



# Influence d'un champ magnétique glissant sur la solidification dirigée des alliages métalliques binaires

Kader Zaidat

## ► To cite this version:

Kader Zaidat. Influence d'un champ magnétique glissant sur la solidification dirigée des alliages métalliques binaires. Electromagnétisme. INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE, 2005. Français. NNT: . tel-01339002

**HAL Id: tel-01339002**

**<https://hal.science/tel-01339002>**

Submitted on 29 Jun 2016

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# **INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE**

N° attribué par la bibliothèque

□□□□□□□□□□

T H E S E

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'INPG**

**Spécialité : Sciences et génie des matériaux**

préparée au laboratoire : **Elaboration par Procédés Magnétiques**  
dans le cadre de l'Ecole Doctorale : **Matériaux et génie des procédés**

présentée et soutenue publiquement

par

**Kader Zaïdat**

le 2 Novembre 2005

**Influence d'un champ magnétique glissant sur la solidification dirigée des  
alliages métalliques binaires**

---

**Directeurs de thèse :**

Mr René Moreau & Mme Marie-Danielle Dupouy

Tutrice : Mme Nathalie Mangelinck-Noël

---

**JURY**

M. J.F. Pinton,

M. G. Faivre,

M. B. Billia,

M. D. Camel,

M. C.A Gandin

M. R. Moreau,

Mme N. Mangelinck-Noël,

Président

Rapporteur

Rapporteur

Examineur

Examineur

Directeur de thèse

Co-encadrante

*A ma famille,  
A la mémoire de Marie-Danielle Dupouy.*

## REMERCIEMENTS

Mes premiers remerciements vont à **Marie-Danielle Dupouy** qui commença à diriger mon travail en m'accordant toute sa confiance. Sa gentillesse, sa rigueur scientifique ainsi que ses connaissances dans le domaine de la solidification ont été d'une grande importance dans la réussite de cette thèse. Plus qu'une directrice je tiens à lui exprimer mon entière gratitude.

Je remercie sincèrement Nathalie Mangelinck-Noël pour avoir suivi mon travail durant toute cette thèse. Sa disponibilité ainsi que son enthousiasme ont été d'une grande importance dans le déroulement de ce travail. J'ai bénéficié de son soutien même dans les moments difficiles. Pour tout cela, je tiens à lui exprimer ma sincère reconnaissance.

Je prie Monsieur René Moreau, d'accepter ma sincère reconnaissance pour avoir assuré la direction de cette thèse. Je tiens également à le remercier tout particulièrement pour son suivi assidu de mon travail, malgré son emploi du temps très chargé.

Je tiens à remercier Messieurs Bernard Billia et Gabriel Faivre qui ont accepté de juger mon travail et d'être rapporteurs de ce mémoire.

Mes remerciements vont également à Messieurs Denis Camel, Charles André Gandin et Jean François Pinton pour m'avoir fait l'honneur d'examiner ce travail et accepté de participer à mon jury de thèse.

Je souhaite exprimer ma reconnaissance à Thierry Duffar, Henri Nguyen-Thi et à Yves Fautrelle pour l'aide efficace qu'ils m'ont apporté dans les domaines de la métallurgie, de la solidification et de la modélisation numérique.

Je remercie sincèrement l'équipe technique de EPM pour son aide constante durant les expériences. J'adresse plus particulièrement mes remerciements à Christian Garnier dont la disponibilité et la rigueur sont sans égales, Gilbert Vian, Denis Bon, Jean Pierre Paulin et Patrick Petitpas pour leur aide déterminante lors de l'élaboration du dispositif expérimental.

Mes remerciements vont également à tout le personnel du laboratoire EPM, permanents thésards, et autres stagiaires, qui m'ont permis de réaliser mon travail de thèse dans un climat chaleureux.

Je remercie tous les membres du laboratoire L2MP à Marseille, en particulier Guillaume Reinhart pour sa précieuse aide lors de la réalisation des oxydations anodiques.

Je ne saurai oublier ma famille ainsi que tous mes amis qui m'ont toujours soutenu durant ces années d'études.

## Table des matières

<b>Introduction générale.....</b>	<b>7</b>
<b>Chapitre I : Rappels sur la solidification dirigée .....</b>	<b>11</b>
1 Généralités sur la solidification dirigée.....	11
1.1 Solidification dans un four de type Bridgman-Stockbarger.....	11
1.2 Microstructures de solidification.....	12
1.2.1 Qu'est ce qu'une microstructure?.....	12
1.2.2 D'où provient elle? .....	12
1.2.3 Et en pratique ?.....	13
1.3 Rappel des équations fondamentales de la solidification dirigée.....	13
1.3.1 Equations de conservation.....	14
1.3.2 Conditions aux limites.....	14
a) Bilans interfaciaux .....	14
b) Equilibre de solidification.....	15
c) Concentration loin de l'interface .....	16
1.3.3 Surfusion de constitution.....	16
1.3.4 Analyse linéaire de stabilité .....	19
1.4 Transition colonnaire équiaxe (CET) : introduction .....	20
1.4.1 Modèle de blocage mécanique pour la CET [14].....	22
1.4.2 Modèle de blocage chimique pour la CET [16] .....	23
2 Convection naturelle .....	25
a) Equations du mouvement.....	26
b) Equation d'état.....	26
2.1 La convection thermosolutale .....	27
a) Origine de la convection thermosolutale.....	27
b) Influence sur la solidification directionnelle.....	28
2.2 Convection d'origine radiale.....	29
a) Origines de la convection radiale .....	29
b) Effets de la convection radiale sur la solidification dirigée.....	29
3 Solidification sous l'effet d'un brassage externe .....	31
3.1 Influence d'un champ de force extérieur.....	31
3.1.1 Brassage mécanique (vibrationnel) .....	32
a) Vibration axiale.....	32
b) Vibration par rotation, (Accelerated Crucible Rotation Technique).....	32
3.1.2 Brassage électromagnétique .....	33
a) Champ magnétique permanent.....	33
b) Champ magnétique tournant .....	34
c) Champ magnétique glissant .....	35
Références du chapitre I.....	38

## Chapitre II : Techniques expérimentales..... 43

1 Introduction .....	43
2 Conception du four et de la bobine .....	43
2.1 Le four à gradient contrôlé .....	43
2.1.1 Modélisation de la thermique .....	44
2.1.2 Résultats de la modélisation .....	46
2.2 Champ magnétique .....	48
2.2.1 Principe de la bobine de Bitter .....	48
2.2.2 Effet joule induit : effet sur la thermique .....	49
2.2.3 Brassage électromagnétique .....	51
a) Calcul de l'épaisseur de peau .....	51
b) Modélisation du champ électromagnétique .....	52
c) Mesure de la composante verticale du champ magnétique .....	54
3 Protocole expérimental et caractérisation .....	56
3.1 Choix de l'alliage et creuset .....	56
3.2 Dispositif de tirage .....	57
3.3 Protocole expérimental .....	57
3.4 Caractérisation des échantillons .....	59
3.4.1 Examen extérieur .....	59
3.4.2 Radiographie X .....	60
3.4.3 Observations métallographiques .....	62
3.4.4 Anodisation .....	62
3.4.5 Analyse d'images .....	64
a) Calcul de la fraction eutectique .....	64
b) Calcul de la taille des grains .....	66
Référence du chapitre II .....	67

## Chapitre III : Macroségrégations ..... 68

1 Introduction .....	68
2 Influence de la convection naturelle et cas de référence .....	68
2.1 Al-3.5%Ni non affiné .....	69
2.2 Al-3.5%Ni affiné .....	70
3 Convection forcée dans le même sens que la convection naturelle par champ magnétique glissant .....	72
3.1 Macroségrégation radiale .....	72
3.1.1 Résultats expérimentaux .....	72
3.1.2 Simulations numériques .....	75
3.2 Macroségrégation longitudinale .....	76
3.2.1 Résultats expérimentaux .....	77
3.2.2 Simulations numériques .....	80
3.3 Influence sur le réseau .....	81
3.3.1 Espacement primaire .....	83
3.3.2 Résultats expérimentaux .....	81

3.3.3 Interprétation du phénomène.....	85
4 Convection forcée dans le sens opposé à la convection naturelle.....	86
4.1 Macroségrégation radiale .....	86
4.1.1 Résultats expérimentaux .....	86
4.1.2 Simulation numérique .....	87
5 Conclusion.....	90
Références du chapitre III .....	91
<b>Chapitre IV : Structure de grains en présence d'un champ magnétique glissant .....</b>	<b>93</b>
1 Introduction .....	93
2 Effet de la convection forcée sur la croissance équiaxe en présence de particules affnantes .....	93
2.1 Affinage de grains : mécanismes de nucléation .....	93
2.2 Expériences .....	94
2.3 Effet de la convection forcée sur la zone de surfusion de constitution .....	96
2.3.1 Influence de l'écoulement sur la couche solutale.....	98
a) Ecoulement potentiel.....	99
b) Présence d'une couche limite visqueuse le long du macro-front.....	104
2.4 Effet de la convection sur les particules affnantes .....	105
3 Effet de la convection forcée sur la structure de grains d'un alliage non affiné : transition colonnaire-équiaxe .....	107
3.1 Influence de la convection forcée.....	108
4 Conclusion.....	110
Références du chapitre IV .....	112
<b>Conclusion et Perspectives.....</b>	<b>114</b>
ANNEXE 1 : Propriétés thermo-physiques de l'alliage Al-Ni 3,5%pds .....	<b>117</b>

## Introduction générale

Dans le domaine de l'élaboration d'alliages métalliques, les principaux enjeux industriels résident dans la possibilité de maîtriser la structure métallurgique ainsi que les défauts qui surviennent lors de la phase de solidification. Une structure métallurgique contrôlée permet de garantir certaines propriétés d'usage du matériau solidifié. Cette structure de grains peut être soit colonnaire, soit équiaxe (ensemble de grains sans direction privilégiée), soit encore les deux à la fois lorsque se produit la « transition colonnaire équiaxe ». Les grains équiaxes ont une croissance isotrope d'où des propriétés mécaniques isotropes (utilisation par exemple pour les pièces de moteur) alors que les grains colonnaires ont une direction privilégiée et une structure anisotrope (utilisation par exemple dans les aubes de turbine).

Lors de la solidification, les mouvements hydrodynamiques dans la phase liquide ont une influence importante sur la structure du produit solidifié ainsi que sur la ségrégation (c'est-à-dire les inhomogénéités de composition au sein du matériau solide). Lorsqu'ils sont naturels, ces mouvements sont engendrés par la convection thermosolutale due aux gradients de température et de concentration, eux-mêmes liés aux diffusivités thermiques des phases, solutale des espèces chimiques et aux différences de conductibilités thermique du solide, du liquide et du creuset pour la convection radiale.

Afin d'isoler les phénomènes dus à la convection, des expériences de solidification ont été réalisées en microgravité et sur Terre. En microgravité, l'absence de convection a permis d'isoler son rôle en comparant les expériences avec celles réalisées sur Terre. Cependant les expériences en microgravité ont un coût non négligeable et surtout elles ne permettent qu'une comparaison a posteriori entre des expériences avec et sans convection. L'idéal consisterait à contrôler cette convection naturelle en lui substituant un mouvement connu et contrôlé. Ceci semble possible dans les métaux liquides, en utilisant un brassage extérieur pour créer des écoulements forcés contrôlés. On peut alors espérer imposer un mouvement organisé. Ce contrôle de l'écoulement devra déboucher sur la maîtrise de la structure de solidification (cellulaire, dendritique), ainsi que sur une maîtrise des défauts.

Parmi les défauts les plus importants, on doit citer les ségrégations, on peut en distinguer trois types : les microségrégations (à l'échelle de la dendrite), les macroségrégations (à l'échelle du lingot) et les mésoségrégations (échelle intermédiaire). Ces deux derniers types de ségrégation sont causés par l'écoulement du liquide à l'intérieur de la zone pâteuse, zone



mi-solide et mi-liquide associée à l'existence des dendrites. Ce mouvement du liquide y draine les éléments d'alliages et les rejette dans la zone liquide.

L'utilisation d'un champ électromagnétique pour contrôler ces écoulements dans le cas d'alliages métalliques, est devenue un moyen privilégié et a déjà fait l'objet de plusieurs expériences et d'applications industrielles. En effet, avec un champ électromagnétique, il est possible d'agir sur les écoulements sans aucun contact physique. Le brassage est assuré par la force de Laplace induite par le champ magnétique. La forme ainsi que l'intensité de l'écoulement dépendent uniquement de cette force. Plusieurs configurations de champ magnétique ont été utilisées en métallurgie, les champs permanents, les champs tournants et les champs glissants. Le champ permanent peut être créé à l'aide d'un aimant, il permet de freiner la gravité lors de la mise en forme du matériau. Le champ tournant ainsi que le champ glissant peuvent être produits par des moteurs polyphasés, leur conception est un peu plus compliquée que celle du champ permanent. Dans le cas d'un champ tournant, le champ magnétique est distribué le long d'un cercle. Cette répartition donne naissance à un mouvement toroïdal, qui, à son tour, donne naissance à un mouvement poloïdal secondaire par effet centrifuge. Dans le cas d'un champ magnétique glissant, le champ magnétique est distribué le long des génératrices de l'inducteur (linéaire). Une telle conception donne naissance à une force de pompage qui induit un mouvement purement poloïdal. L'intensité et la direction de ce mouvement peuvent être contrôlées, ce qui, avec son organisation plus simple, lui confère un avantage par rapport au champ tournant, où seule l'intensité du mouvement toroïdal est contrôlable. En solidification dirigée d'alliages métalliques, plusieurs études ont montré que c'est le mouvement poloïdal qui est déterminant pour le contrôle des écoulements dans le bain liquide. Cette dernière remarque, nous a conforté dans le choix d'un champ magnétique glissant pour piloter les écoulements dans le bain liquide lors de notre étude expérimentale. Dans le cas de la solidification des alliages d'aluminium, un nouveau dispositif a été conçu au laboratoire EPM, qui associe un four de solidification dirigée de type Bridgman ainsi qu'un inducteur linéaire permettant de créer le champ magnétique glissant. Aux trois paramètres classiques de la solidification dirigée (concentration initiale, gradient thermique et la vitesse de tirage) s'ajoutent l'intensité du champ magnétique et sa direction.

S'agissant des structures de solidification, la microstructure dendritique est la plus fréquemment rencontrée dans l'élaboration des métaux et de leurs alliages. Les dendrites peuvent être colonnaires ou équiaxes, en fonction des conditions d'élaboration (gradient de température au front, vitesse de solidification, teneur en soluté pour un alliage, présence ou non de particules affinantes). La microstructure équiaxe est favorisée lorsqu'une fine

dispersion de particules affinant constituant des sites de germination efficaces est réalisée au sein de la phase liquide (affinage). Par contre, le mécanisme d'affinage n'est pas le seul à pouvoir créer une zone équiaxe : il y a également la fragmentation des dendrites, c'est ce qui se passe dans le cas de la coulée continue. Les écoulements dans le bain liquide lors de la solidification peuvent être à l'origine des fragments qui donnent naissance aux grains équiaxes et qui favorisent la transition colonnaire-équiaxe.

De plus, la croissance équiaxe est influencée par la gravité qui entraîne à la fois des mouvements de convection naturelle du liquide porteur de fragments susceptibles de devenir des germes, et une décantation par différence de densité des particules affinant et des cristaux en cours de croissance. Les mécanismes qui entrent en jeu lors de la transition colonnaire-équiaxe (que l'on désignera par le sigle anglais CET dans la suite) sont encore mal compris.

Ce travail entre dans le cadre d'un projet MAP (*Microgravity Application Program*) de l'Agence Spatiale Européenne (ESA) nommé CETSOL (*Columnar to Equiaxed Transition in SOLidification processing*). Ce programme regroupant plusieurs groupes européens (France, Allemagne, Irlande) se situe dans la perspective d'une meilleure compréhension de la CET et d'un contrôle de la structure de solidification à l'aide d'une convection forcée. Chaque groupe étudie un système différent de pilotage de la convection forcée en plus des travaux de simulation numérique. Le champ magnétique tournant est étudié au laboratoire ACCESS en Allemagne, les vibrations sont étudiées au L2MP à Marseille.

La contribution de cette thèse s'inscrit dans la continuité des travaux effectués par M. D. Dupouy et D. Camel au CEA-Grenoble sur l'analyse des effets convectifs lors de la solidification dirigée. Des résultats ont été établis pour ce qui concerne la convection naturelle en comparant des expériences réalisées au sol et avec d'autres réalisées en microgravité (missions Spacelab-STS95 en 1998, et MIR-PERSEUS en 1999). Cette thèse permet leur extension au cas d'un brassage forcé à l'aide d'un champ magnétique glissant. Les essais réalisés au sol au cours de cette thèse, dans lesquels le brassage forcé est couplé aux effets de gravité, pourront également servir à définir une expérience spatiale, qui devrait permettre : 1) de déterminer les microstructures de référence obtenues en l'absence de convection, 2) d'étudier en continu la transition d'un régime diffusif à un régime convectif par l'application en microgravité d'un brassage croissant à l'aide du champ magnétique, et enfin 3) par comparaison des expériences au sol et en microgravité, de séparer les contributions de la gravité et de la convection forcée.

Après avoir présenté le contexte de l'étude dans cette introduction générale, nous effectuerons un rappel sur les fondements de la solidification en présence ou non d'une convection forcée. Puis, nous détaillerons dans le chapitre II, le dispositif expérimental ainsi que les techniques utilisées au cours de cette étude avant de mettre en avant les résultats obtenus sur le contrôle des macroségrégations dans un troisième chapitre. Ensuite, une étude sera présentée dans le chapitre IV, montrant l'effet de la convection forcée sur la solidification équiaxe et sur la transition colonnaire-équiaxe (CET). Enfin, nous concluons en mettant en exergue les points cruciaux de cette étude et en suggérant des perspectives de prolongement.

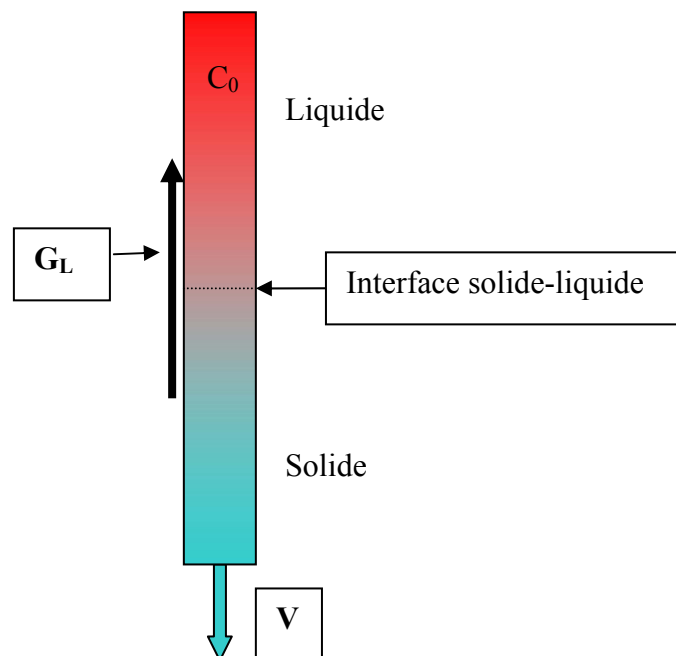
# Chapitre I : Rappels sur la solidification dirigée en présence de convection naturelle ou forcée

## 1 Généralités sur la solidification dirigée

Afin de mieux comprendre les phénomènes de solidification, il est nécessaire de réaliser des expériences qui permettent de contrôler ses paramètres. Le procédé de solidification dirigée de type Bridgman est l'un des plus couramment utilisés pour l'étude des microstructures de l'interface solide-liquide, car il permet de faire varier indépendamment les trois paramètres expérimentaux (gradient de température, concentration de l'alliage et vitesse de tirage).

### 1.1 Solidification dans un four de type Bridgman-Stockbarger

Le four de type Bridgman est constitué d'au moins deux zones, une zone froide et une zone chaude. A l'intérieur de ce four un gradient thermique  $G_L$  unidirectionnel, de la zone froide vers la zone chaude est imposé de l'extérieur. Un alliage de concentration initiale  $C_0$ , contenu dans un creuset, est déplacé avec une vitesse  $V$  à l'intérieur du four passant de sa forme liquide dans la zone chaude vers sa forme solide dans la zone froide (figure 1.1). Il se crée alors une interface de solidification solide-liquide.



**Figure 1.1** : Principe d'une expérience de solidification dirigée de type Bridgman.

## 1.2 Microstructures de solidification

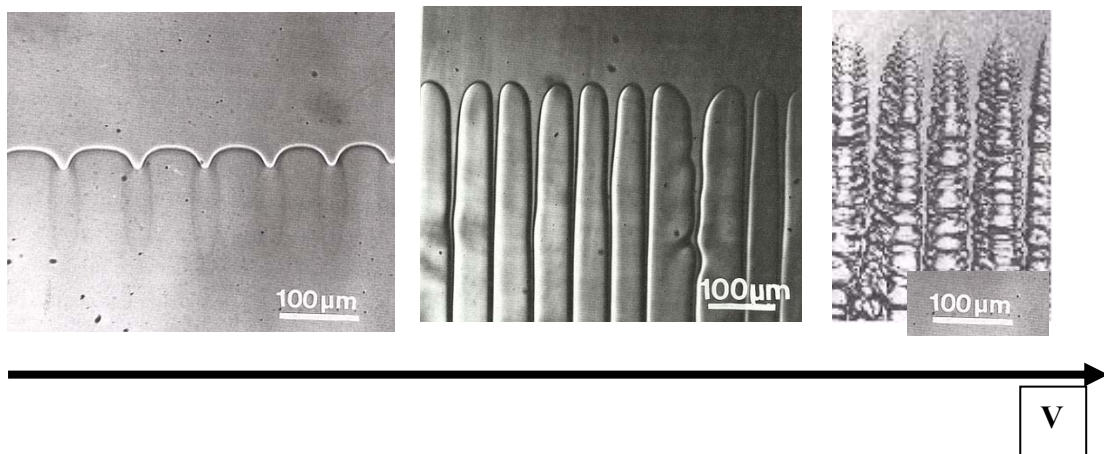
### 1.2.1 Qu'est ce qu'une microstructure?

La microstructure d'un matériau solide est la trace parfois complexe, laissée par les transformations de la matière subies au long de toute la chaîne d'élaboration et de traitements successifs. La raison première de l'existence des microstructures dans les matériaux est le manque relatif de mobilité des atomes à l'état solide.

La microstructure de solidification est formée lors du passage de l'état liquide à l'état solide, elle représente un compromis au delà du seuil de déstabilisation morphologique [1] (voir détails dans le paragraphe suivant) entre la nécessité de créer beaucoup de surface d'échange pour des raisons cinétiques (refroidissement rapide) et la possibilité de réarranger cette surface d'échange par sphéroïdisation (phénomènes de maturation et de coalescence) pour des raisons énergétiques (refroidissement lent).

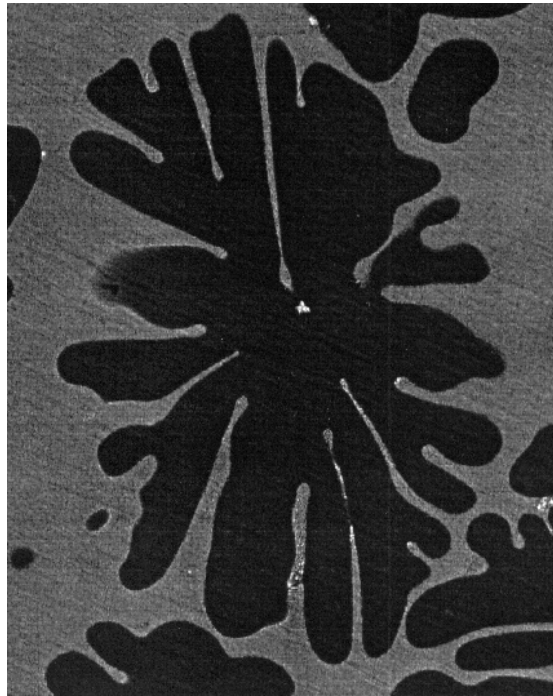
### 1.2.2 D'où provient elle?

Elle résulte d'une déstabilisation morphologique dont l'origine est thermique pour un métal pur et constitutionnelle pour un alliage. La croissance d'un alliage dans des conditions d'instabilité de l'interface de solidification peut conduire à des microstructures de type cellulaire ou de type dendritique comme illustré sur la figure 1.2. En fonderie industrielle, où l'on utilise de grandes vitesses de tirage, ce sont des structures dendritiques qui sont observées.



**Figure 1.2:** Différentes formes d'interface solide-liquide, génératrices de la microstructure finale pour des alliages transparents (succinonitrile-acétone) [2], de gauche à droite : Cellules d'amplitude faible, Cellules profondes, Dendrites colonnaires. La vitesse augmente pour un  $G$  et  $C_0$  constant.

Les dendrites peuvent également prendre la forme de dendrites équiaxes (figure 1.3) dont l'origine sera discutée dans la suite.



**Figure 1.3:** Dendrite équiaxe d'un alliage Al-Ni 3,5pds% affiné d'après [13].

### 1.2.3 Et en pratique ?

De nombreuses propriétés d'usage (mécaniques, chimiques et physiques) dépendent directement de la microstructure. Par exemple, la transparence d'un verre silicaté peut rapidement disparaître par une cristallisation accidentelle, ou encore la limite d'élasticité d'un acier augmente avec la finesse de la microstructure perlitique. Pour les aciers, on peut modifier la microstructure de solidification lors des traitements en phase solide et thermomécaniques ultérieurs. Il n'en est pas de même pour l'aluminium et ses alliages, où la microstructure de solidification, dendritique équiaxe ou colonnaire, influe directement sur les propriétés mécaniques résultantes d'où l'importance de la sélection et du contrôle de la microstructure, pour la maîtrise des propriétés d'usage du matériau.

### 1.3 Rappel des équations fondamentales de la solidification dirigée

La croissance unidirectionnelle en régime diffusif est décrite par un ensemble d'équations qu'il est commode d'écrire dans le référentiel mobile lié à l'interface plane se déplaçant à une vitesse  $V$ , que nous supposons plus loin colinéaire à la force de gravitation, où il peut exister une solution stationnaire. Nous considérerons les milieux latéralement infinis.

### 1.3.1 Equations de conservation

Les bilans volumiques de température  $T_{S,L}$  et de concentration  $C_L$  s'obtiennent en écrivant les équations de conservation de l'énergie et de la masse de soluté dans les deux phases. Pour un alliage binaire dilué, des expressions simplifiées (1.1) et (1.2) peuvent être écrites dans le cadre du "*modèle minimal*", qui consiste à négliger la diffusion de soluté dans le solide et à considérer la diffusion thermique infiniment rapide devant la diffusion solutale dans les deux phases [4]. Cette dernière hypothèse est vérifiée pour la majorité des matériaux dans la mesure où le coefficient de diffusion solutal ( $D_L \sim 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$ ) est très inférieur au coefficient de diffusion thermique qui varie entre  $10^{-1}$  (pour les métaux) et  $10^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}$  (pour les alliages organiques).

$$\nabla^2 T_{S,L} = 0, \quad (1.1)$$

$$\frac{\partial C_L}{\partial t} = D_L \nabla^2 C_L + \mathbf{V} \cdot \nabla C_L. \quad (1.2)$$

### 1.3.2 Conditions aux limites

#### a) Bilans interfaciaux

Dans les équations qui suivent, l'indice  $\phi$  signifie que la valeur de la grandeur considérée est prise au niveau de l'interface solide-liquide dont l'équation s'écrit  $z = \phi(x,y)$ . On néglige les effets associés à la contraction (ou la dilatation) volumique qui accompagnent le changement de phase.

$$\underline{\text{Continuité de la température}} \quad [T_S]_{\phi} = [T_L]_{\phi} = T_{\phi}, \quad (1.3)$$

$$\underline{\text{Conservation de la chaleur}} \quad [K_S \nabla T_S - K_L \nabla T_L]_{\phi} \cdot \mathbf{n} = L \mathbf{V} \cdot \mathbf{n}, \quad (1.4)$$

$$\underline{\text{Conservation du soluté}} \quad D_L [\nabla C]_{\phi} \cdot \mathbf{n} = [C_S - C_L]_{\phi} \mathbf{V} \cdot \mathbf{n}, \quad (1.5)$$

Dans ces équations,  $K_S$  et  $K_L$  désignent les conductibilités thermiques dans le solide et le liquide,  $\mathbf{V}$  la vitesse de croissance,  $\mathbf{n}$  la normale en un point de l'interface,  $L$  la chaleur latente de fusion de l'alliage par unité de volume et  $D_L$  le coefficient de diffusion solutale.

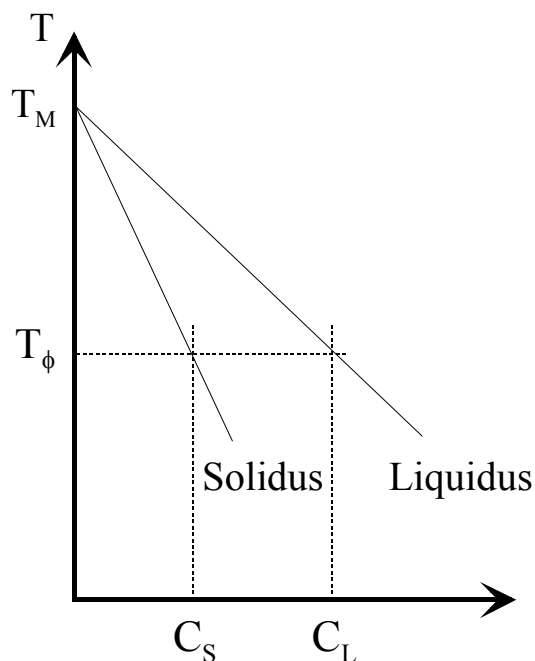
### *b) Equilibre de solidification*

En croissance directionnelle d'alliages présentant une interface rugueuse, l'attachement des atomes "liquides" au front solide peut être considéré comme infiniment rapide et le front de solidification en quasi-équilibre thermodynamique. Cette approximation conduit à deux relations importantes au niveau de l'interface solide-liquide:

#### Coefficient de partage $k$

A partir du diagramme d'équilibre des phases, nous définissons le coefficient de partage  $k$  supposé constant, comme le rapport à l'interface de la concentration du soluté dans le solide à celle dans le liquide (figure 1.4):

$$k = \left[ \frac{C_S}{C_L} \right]_{\phi} \quad (1.6)$$



**Figure 1.4** Extrait du diagramme d'équilibre pour un alliage dilué et  $k < 1$  (cas des alliages utilisés dans nos expériences).

Lorsque ce coefficient de partage est inférieur à 1 comme c'est le cas pour l'alliage Al-Ni 3,5%pds choisi ( $k=0.003$ ), il se produit un rejet de soluté au cours de la transformation solide-liquide. Le liquide adjacent à l'interface est alors riche en soluté.



### Equation de Gibbs-Thomson

La température d'équilibre  $T_E$  pour une interface courbe vérifie l'équation de Gibbs-Thomson:

$$T_\phi = T_E = T_M + m_L C_L - \Gamma \kappa, \quad (1.7)$$

où  $T_M$  désigne la température de fusion du solvant pur,  $m_L$  la pente du liquidus,  $\kappa$  la courbure interfaciale et  $\Gamma$  la constante capillaire donnée par

$$\Gamma = \frac{\gamma T_M}{L}, \quad (1.8)$$

où  $\gamma$  est la tension interfaciale solide-liquide de l'alliage.

#### *c) Concentration loin de l'interface*

Loin de l'interface, en régime diffusif, on retrouve la concentration initiale de l'alliage:

$$C_L = C_0 \text{ pour } z \rightarrow \infty. \quad (1.9)$$

### **1.3.3 Surfusion de constitution**

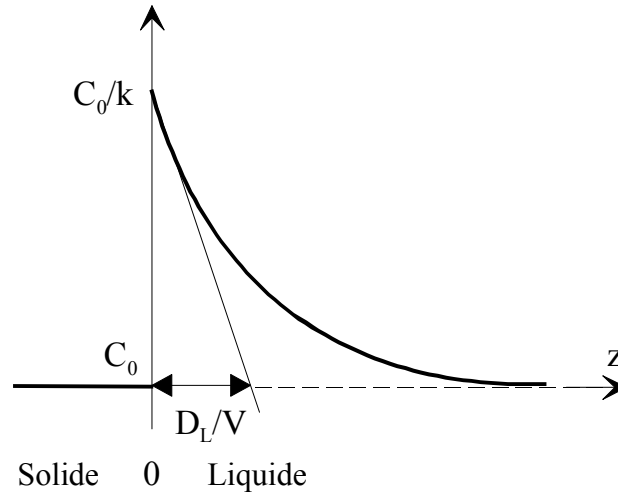
L'origine du phénomène d'instabilité morphologique a d'abord été comprise par Rutter et Chalmers [5] qui ont introduit la notion de surfusion de constitution à partir de considérations purement thermodynamiques: le front plan peut devenir instable si le liquide adjacent à l'interface solide-liquide est thermodynamiquement instable, c'est à dire si sa température réelle  $T_L$  est inférieure à une température fictive d'équilibre  $T_E$ . L'expression analytique, en solidification stationnaire, du critère de surfusion de constitution a été établie par Tiller *et al.* [6].

Le profil de concentration en amont du front de solidification ( $V > 0$ ) s'obtient en intégrant l'équation (1.2) avec les conditions aux limites (1.5) et (1.9):

$$C_L(z) = C_0 + [C_L - C_S]_\phi \exp\left(-\frac{V}{D_L} z\right). \quad (1.10)$$

Au niveau de l'interface ( $z = 0$ ), la concentration du solide est égale à celle du liquide à l'infini  $C_0$ . D'autre part, en introduisant le coefficient de partage dans l'équation (1.10), on obtient l'expression (1.11) dont l'allure est représentée sur la figure 1.5.

$$C_L(z) = C_0 \left[ 1 + \left( \frac{1-k}{k} \right) \exp \left( - \frac{V}{D_L} z \right) \right]. \quad (1.11)$$



**Figure 1.5** : Profil de concentration en soluté au voisinage de l'interface solide-liquide plane ( $k < 1$ ) dans le référentiel mobile.

La température d'équilibre d'un alliage est finalement donnée par:

$$T_{Eq}(z) = T_M + m_L C_L(z) = T_M + m_L C_0 \left[ 1 + \left( \frac{1-k}{k} \right) \exp \left( - \frac{V}{D_L} z \right) \right]. \quad (1.12)$$

Par ailleurs, en supposant la diffusion thermique instantanée, le profil de température dans la phase liquide est linéaire au voisinage du front :

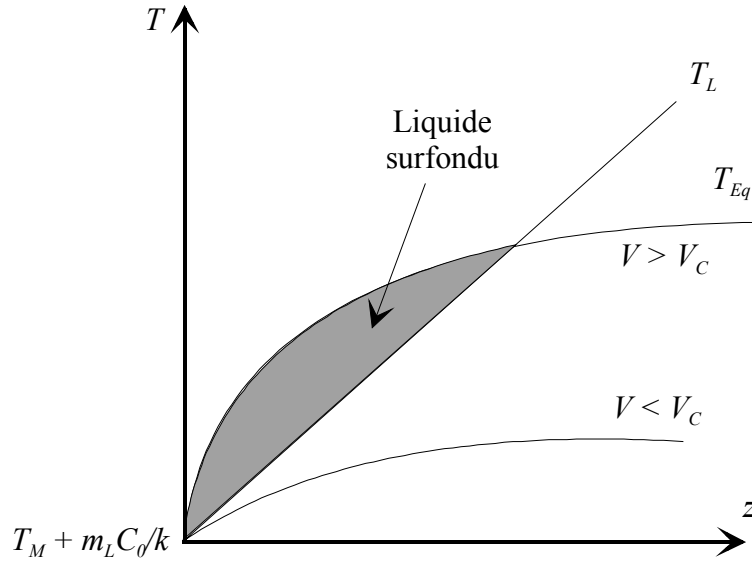
$$T_L(z) = T_M + m_L \frac{C_0}{k} + G_L z. \quad (1.13)$$

A gradient de température et concentration fixés, si l'on porte sur une même figure les deux distributions de température, il apparaît une zone de liquide surfondu pour une vitesse  $V$  supérieure à la vitesse critique  $V_C$  (figure 1.7). Le critère de surfusion de constitution suppose

que toute perturbation naissant sur l'interface plane se développera à condition que soit vérifiée la relation:

$$G_L - m_L G_C < 0, \quad (1.14)$$

où  $G_C$  est le gradient de concentration dans le liquide à l'interface, que l'on peut déduire de l'équation (1.11).



**Figure 1.6 :** Représentation de la surfusion de constitution.

En conclusion, un front plan peut être considéré comme instable lorsque la condition :

$$V > V_C = \frac{k G_L D_L}{(k-1) m_L C_0} \quad (1.15)$$

est vérifiée. Bien que cette analyse soit basée sur un argument purement thermodynamique et que tout l'aspect dynamique de la solidification soit ignoré, son accord avec l'expérience peut être considéré comme satisfaisant en première approche. De plus, elle met en évidence l'effet stabilisant du gradient de température et déstabilisant du gradient de concentration. Par contre, il est évident que la surfusion de constitution ne donne aucune prédiction sur la taille, et encore moins sur la forme, de la microstructure qui s'établit au niveau du front de solidification.

### 1.3.4 Analyse linéaire de stabilité

La première étude complète de stabilité du front de solidification plan a été réalisée par Mullins et Sekerka [1] en introduisant la tension interfaciale par la relation de Gibbs-Thomson. Par une analyse linéaire en perturbations, ils affinent le critère de surfusion de constitution et donnent en outre la longueur d'onde au seuil d'instabilité.

Le principe d'une telle analyse consiste à déduire le taux de croissance  $\sigma(q)$  d'une perturbation infinitésimale harmonique, de nombre d'onde  $q$ , que l'on superpose à la solution stationnaire du système d'équations linéaires et homogènes vérifiées par les grandeurs non perturbées. Dans notre cas, les équations de la solidification admettent une solution stationnaire simple: le front plan avec les profils de concentration et de température donnés par (1.11) et (1.13). Si l'analyse linéaire conduit à  $\sigma$  positif, la perturbation croît indéfiniment et le front plan est instable. Dans le cas contraire, le front est stable. L'analyse linéaire de Mullins et Sekerka établit que toutes les perturbations sont stables si le critère de stabilité :

$$\frac{K_S G_S + K_L G_L}{K_S + K_L} - m_L G_C \mathbf{S} > 0 \quad (1.16)$$

est vérifié. Dans cette expression (1.16),  $\mathbf{S}$  ( $\mathbf{S} < 1$ ) est la fonction de stabilité qui caractérise l'effet stabilisant de la tension interfaciale: faible lorsque  $\mathbf{S}$  est proche de 1 et augmentant quand  $\mathbf{S}$  s'en écarte.  $\mathbf{S}$  est une fonction qui dépend essentiellement du coefficient de partage  $k$  et du nombre de Sekerka  $A$  [7].

En introduisant le gradient de température pondéré  $G^*$  :

$$G^* = \frac{K_S G_S + K_L G_L}{K_S + K_L}, \quad (1.17)$$

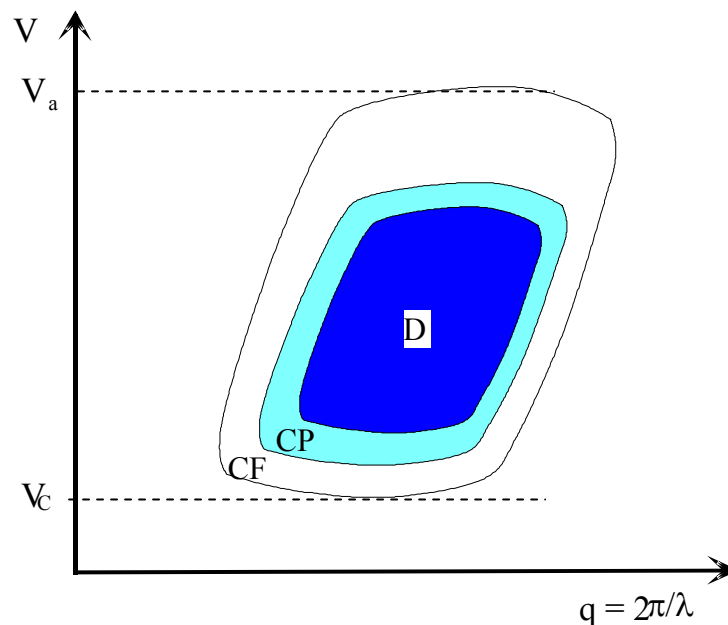
on peut écrire ce critère de stabilité sous une forme analogue au critère de surfusion (1.16):

$$G^* - m_L G_C \mathbf{S} > 0. \quad (1.18)$$

Si nous supposons égales les conductibilités thermiques dans le solide et le liquide ( $G^* = G_L$ ) et les effets capillaires négligeables ( $\mathbf{S} = 1$ ), on retrouve le critère de surfusion de constitution. Pour les alliages métalliques, ces considérations ne sont plus valables et l'analyse de Mullins et Sekerka conduit à une meilleure détermination du seuil de transition front plan -

front cellulaire. Néanmoins, par sa facilité d'utilisation, le critère de surfusion de constitution reste très utilisé pour l'estimation du seuil d'instabilité morphologique.

De plus, l'analyse de Mullins et Sekerka permet d'établir, pour un alliage donné, le domaine des nombres d'onde  $q$  stables et instables dans le plan  $(V, q)$  (figure 1.7). Sur ce schéma apparaît  $V_a$  qui est la vitesse de stabilité absolue au delà de laquelle le front plan redevient stable mais qui, en dehors des alliages extrêmement dilués, ne peut pas être atteinte en général en croissance directionnelle de type Bridgman. Au delà du seuil de stabilité absolu, les effets capillaires re-stabilisent le système. On notera également que la courbe donnant la limite de stabilité au voisinage du seuil  $V_c$  est très plate [8], contrairement à d'autres instabilités comme par exemple celles de Rayleigh-Bénard ou de Bénard-Marangoni. Ceci se traduit par un large domaine de tailles possibles pour les microstructures au delà du seuil de Mullins et Sekerka, et explique en partie la nature fortement désordonnée des réseaux cellulaires observés en solidification dirigée [9]. En d'autres termes, en solidification dirigée, la théorie linéaire ne conduit pas à la sélection d'une taille unique.



**Figure 1.7 :** Allure du diagramme de stabilité linéaire de l'instabilité morphologique dans le plan  $(V, q)$  D : dendrites, CP : cellules profondes, CF : cellules d'amplitude faible.

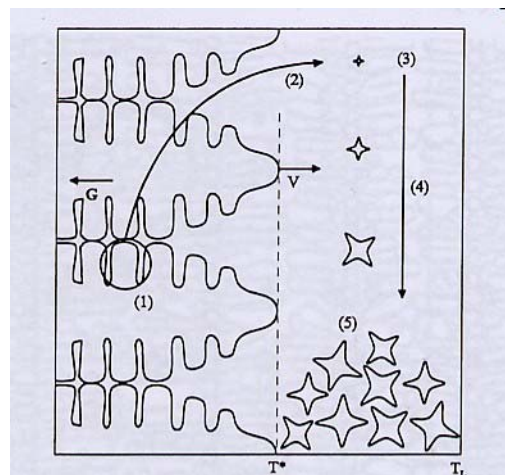
#### 1.4 Transition colonnaire équiaxe (CET) : introduction

La transition colonnaire équiaxe est un problème d'actualité en métallurgie car les deux formes de grains sont à l'origine de propriétés différentes. Il est donc critique de pouvoir

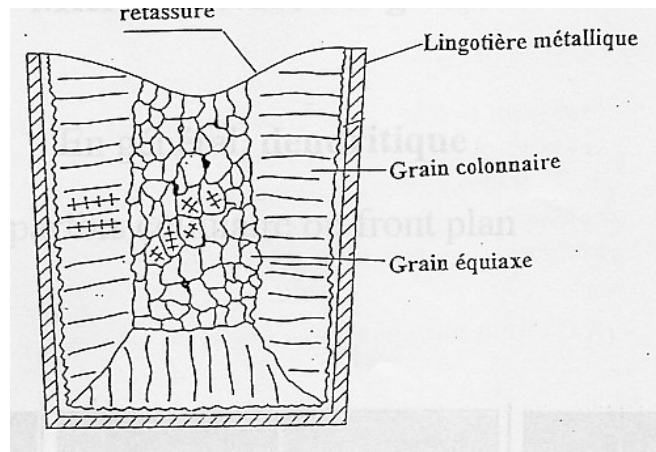
contrôler la transition colonnaire équiaxe et d'en comprendre les phénomènes physiques sous jacents.

D'un point de vue théorique, la structure de grains résulte de phénomènes de germination et de croissance opérants dans deux modes distincts, le mode colonnaire et le mode équiaxe, qui sont en compétition. En avant d'un front dendritique colonnaire se trouve une zone de liquide surfondu (surfusion  $\Delta T_C$ ) entre la température de pointe des dendrites colonnaires et la température du liquidus (figure 1.8). Si des germes solides sont présents dans cette zone, ils peuvent croître et on observe une compétition entre la croissance de cristaux équiaxes libres et l'avancée du front colonnaire qui peut aboutir à la transition colonnaire équiaxe. La formation des germes solides embryons des grains équiaxes peut avoir deux origines:

- Les germes peuvent provenir de fragments de bras dendritiques détachés par refusion locale et transportés par convection (fragmentation) [10,11]. La refusion locale peut résulter d'un mécanisme de réajustement des espacements dendritiques [12], suite à une décélération du front colonnaire, et/ou être entretenue par un écoulement convectif local [13]. La convection joue certainement un rôle important dans ce type de transition, pour transporter ces germes potentiels dans la zone de liquide surfondu. Dans la partie centrale des lingots industriels, le front colonnaire est stoppé par une croissance massive de cristaux équiaxes, lorsque le liquide restant devient surfondu (figure 1.9).



**Figure 1.8** : Mécanisme de transition colonnaire équiaxe décrit par le modèle de Maxwell et Hellawell [10] en solidification horizontale.



**Figure 1.9** : Transition colonnaire équiaxe dans le cas des ligots industriels.

- L'adjonction de particules germinantes efficaces (affinant) favorise la transition colonnaire-équiaxe, même si une faible partie du liquide est surfondue. Il suffit que la surfusion nécessaire pour la nucléation  $\Delta T_N$  des cristaux sur les particules soit plus faible que la surfusion maximale dans le liquide  $\Delta T_C$ , et que la densité de particules affinant soit suffisamment élevée, ce qui est le cas pour les alliages d'aluminium affinés.

#### 1.4.1 Modèle de blocage mécanique pour la CET [14]

Ce concept s'appuie sur le modèle de Hunt [14]. Hunt néglige la convection et considère une vitesse de front colonnaire constante et égale à la vitesse des isothermes. Dans ce modèle, Hunt considère de plus que le liquide dans lequel baignent les grains équiaxes et colonnaires reste à la composition initiale  $C_0$ , ce qui implique que l'interaction due au rejet de soluté n'est pas prise en compte. Seules les interactions géométriques entre grains équiaxes et front colonnaire sont prises en compte. La surfusion présente dans la couche surfondue en avant du front colonnaire ne peut dépasser  $\Delta T_c$

$$\Delta T_c = \left(\frac{C_0}{A}\right)^{\frac{1}{2}} V^{\frac{1}{2}} \quad (1.19)$$

où  $V$  désigne la vitesse de solidification et  $A$  une constante qui dépend des caractéristiques thermo-physiques de l'alliage. Les cristaux équiaxes germent lorsque la surfusion dépasse une valeur seuil  $\Delta T_N$ . Ensuite, ils croissent avec une vitesse  $V_{qx}$  en fonction de la valeur locale de la surfusion :

$$V_{qx} = \frac{A}{C_0} (\Delta T)^2. \quad (1.20)$$

Le rayon des cristallites ainsi formées peut être évalué en intégrant la vitesse de croissance depuis l'instant de germination, en fonction du temps :

$$r = \int_0^t V_{qx} dt. \quad (1.21)$$

A partir de ces hypothèses, Hunt propose un critère de blocage mécanique pour la transition colonnaire équiaxe. La structure est considérée équiaxe si, au front colonnaire ( $\Delta T = \Delta T_c$ ), la fraction volumique équiaxe  $g_{qx}$  dépasse une valeur seuil que l'auteur fixe à 49% ce qui conduit aux équations suivantes :

$$g_{qx} = N_0 \frac{4}{3} \pi r^3 = 0,66 ; \quad (1.22)$$

soit

$$r > r_{qx} = 0,54 N_0^{-\frac{1}{3}}. \quad (1.23)$$

avec  $N_0$  qui représente le nombre de sites libres par unités de volume permettant la nucléation hétérogène.

On en tire le critère de croissance équiaxe de Hunt :

$$G_{eq} < 0.617 N_0^{-\frac{1}{3}} \left\{ 1 - \left( \frac{\Delta T_N}{\Delta T_c} \right)^3 \right\} \Delta T_c. \quad (1.24)$$

La croissance est équiaxe quand le gradient de température est inférieur à  $G_{eq}$ .

Ce modèle permet une approche qualitative en donnant les tendances à l'origine de la transition colonnaire équiaxe. Il montre que la transition est favorisée par un faible gradient de température, une vitesse élevée, une densité de germes actifs élevée et  $\Delta T_N$  faible.

De nombreuses expériences ont alors été menées, mais aucune comparaison détaillée n'a été réalisée avec ce modèle. Les expériences les plus récentes ont été faites par Siquiera *et al.* [15]. Elles mettent en évidence des améliorations possibles du critère de Hunt. En particulier, elles montrent qu'il faut prendre en compte les interactions des champs de soluté autour du front colonnaire et des grains équiaxes, ce qui est le cas dans les modèles décrits dans la suite.

#### 1.4.2 Modèle de blocage chimique pour la CET [16]

Dans ce modèle dû à Martorano *et al.* [16], un nouveau mécanisme de transition colonnaire équiaxe, basé sur la présence d'interactions chimiques dues au rejet de soluté lors de la croissance des grains est présenté. Les équations sont basées sur le modèle de Wang et Beckerman [17] établi quelques années auparavant. La convection est négligée ainsi que le mouvement des grains équiaxes libres. Martorano *et al.* définissent trois phases dans un



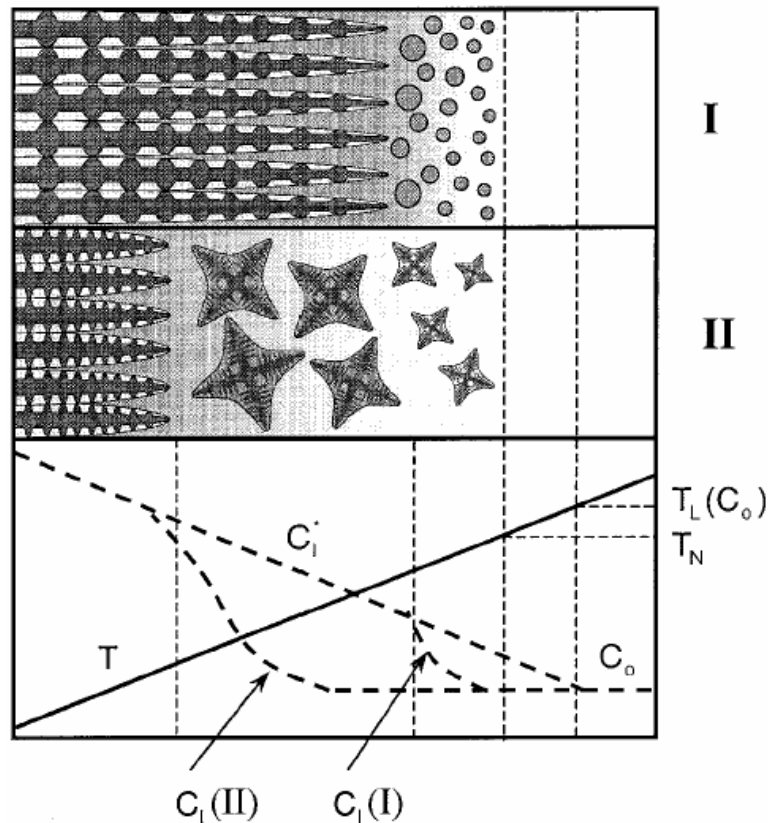
volume élémentaire : un solide de fraction volumique  $\varepsilon_s$ , un liquide intradendritique de fraction  $\varepsilon_d$  et un liquide extradendritique de fraction  $\varepsilon_l$  et où  $\varepsilon_g = \varepsilon_s + \varepsilon_d$  est la fraction volumique de grains. Avec ces notations, le critère de transition colonnaire équiaxe de Hunt [14] est alors :  $\varepsilon_g = 49\%$ . Pour modéliser le grain équiaxe avec ses branches dendritiques, ils utilisent une sphère équivalente de surface  $S_e$ . L'espacement entre les grains est noté  $R_f$ . Aux équations de conservation d'énergie et de soluté est ajoutée une vitesse de croissance du grain régie par une cinétique de croissance de pointe libre :

$$v = f(\Omega) \text{ avec } \Omega = \frac{C_l^* - C_l}{C_l^*(1-k)} \text{ et } f(0) = 0.$$

où  $C_l$  et  $C_l^*$  représentent respectivement la concentration dans le liquide et la concentration aux pointes des dendrites.

Dans le modèle de Hunt,  $C_l$  est une concentration considérée constante, égale à  $C_0$ , alors que l'originalité du modèle de Martorano *et al.* consiste à prendre en compte les variations de  $C_l$  pour la croissance des grains équiaxes, mais pas pour celle du front colonnaire.

Le modèle de Martorano *et al.* permet de mettre en évidence deux cas limites pour la transition colonnaire équiaxe, représentés sur la figure 1.10. Dans le cas I de la figure 1.10, la densité de grains équiaxes est relativement grande, comme dans le cas où un inoculant est employé, les grains équiaxes restent pratiquement globulaires. Un grand nombre de grains globulaires rejettent une grande quantité de soluté dans le liquide environnant, causant une réduction rapide de la surfusion solutale en avant du front colonnaire. La transition colonnaire équiaxe a lieu pour des valeurs de fraction volumique inférieures à 0,49 (critère de Hunt). Dans le cas II, la densité de grains est relativement plus petite et la taille des grains est plus grande ( $R_f$  augmente). Les grains équiaxes deviennent fortement dendritiques. Ainsi, pour les grandes valeurs de  $R_f$ , la concentration  $C_l$  demeure un certain temps proche de  $C_0$  avant de tendre vers  $C_l^*$ . Pendant cette durée, les grains équiaxes croissent et la transition colonnaire équiaxe a lieu pour des fractions volumiques  $\varepsilon_g > 49\%$ , comme prévu par le critère de Hunt [14].



**Figure 1.10** : Illustration schématique des interactions solutales entre les grains colonnaires et équiaxes d'après [16] Cas I : Interactions solutales en présence d'une grande densité de grains Cas II : Interactions solutales en présence d'une densité plus petite.

La comparaison du modèle de Martorano *et al.* avec les expériences réalisées par Gandin [18] montre une concordance satisfaisante pour la transition colonnaire équiaxe. Cependant, les auteurs proposent des expériences complémentaires et nécessaires pour tester le modèle et mieux comprendre les mécanismes de la transition colonnaire équiaxe.

Les modèles classiques de transition colonnaire-équiaxe ne tiennent pas compte de la convection naturelle ou forcée qui a pourtant une influence majeure : mouvements des fragments, des particules et des grains équiaxes, modification de la répartition du soluté...

## 2 Convection naturelle

Dans les conditions usuelles d'élaboration, la phase liquide est presque toujours animée de mouvements macroscopiques dus à la convection forcée ou naturelle [19] et l'on ne peut pas se limiter au cas diffusif. La convection naturelle peut avoir plusieurs origines: (i) la différence de masses volumiques entre les deux phases qui induit, en général, un retrait lors du changement de phase, (ii) la convection Marangoni due à la non-uniformité de la tension interfaciale au niveau d'une surface libre et (iii) les gradients de température ou de concentration, c'est-à-dire de densité, dans le bain fondu.

Sous gravité normale, en solidification dirigée d'alliages usuels, comme ce sera le cas dans toutes nos expériences, les deux premières causes de convection sont en général négligeables [20, 21] et seule la convection naturelle associée aux gradients de température ou de concentration solutale est significative. Par contre, lors d'expériences spatiales, sous gravité très réduite la convection Marangoni peut devenir prépondérante.

#### a) Equations du mouvement

En présence de convection naturelle dans la phase liquide, on doit ajouter aux équations de la solidification directionnelle celles associées à l'hydrodynamique: la conservation de la quantité de mouvement et la conservation de la masse. Dans le cadre de l'approximation de Boussinesq, la variation de la masse volumique dans le liquide est de loin inférieure à la masse volumique elle-même, de sorte que seul le terme lié à la gravité est conservé. Dans ce cas, les équations de conservation s'écrivent:

$$\text{Equation de Navier – Stokes} \quad \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} = -\frac{1}{\rho_0} \nabla p + \nu \nabla^2 \mathbf{u} + \frac{\rho}{\rho_0} \mathbf{g}, \quad (1.25)$$

$$\text{Equation de continuité} \quad \nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad (1.26)$$

où  $\mathbf{u}$  est le vecteur vitesse du fluide,  $p$  est la pression,  $\nu$  est la viscosité cinématique,  $\rho$  la masse volumique, et  $\mathbf{g}$  l'accélération de la gravité. L'indice 0 indique l'état de référence.

#### b) Equation d'état

Pour compléter les équations du mouvement, il faut ajouter l'équation d'état pour la masse volumique dans le bain fondu. En présence de gradients de température et de concentration, elle s'écrit en première approximation (dite de Boussinesq) :

$$\rho = \rho_0 [1 - \beta_T (T - T_0) + \beta_C (C - C_0)], \quad (1.27)$$

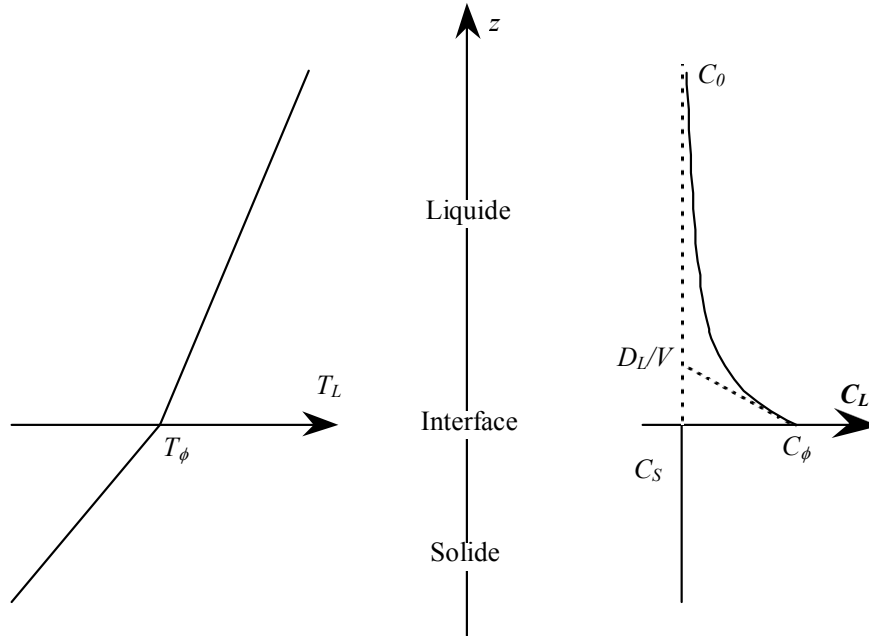
où  $\beta_T$  désigne le coefficient de dilatation thermique et  $\beta_C$  l'opposé du coefficient de dilatation solutale:

$$\beta_T = -\frac{1}{\rho_0} \left( \frac{\partial \rho}{\partial T} \right)_C \quad \text{et} \quad \beta_C = \frac{1}{\rho_0} \left( \frac{\partial \rho}{\partial C} \right)_T. \quad (1.28)$$

## 2.1 La convection thermosolutale

### a) Origine de la convection thermosolutale

Lors de la croissance unidirectionnelle d'un alliage binaire, les profils de concentration (pour  $k < 1$ ) et de température sont donnés par les relations (1.11) et (1.13) et représentés sur la figure 1.11.



**Figure 1.11** : Profils de température et de concentration en amont de l'interface lors de la solidification unidirectionnelle stationnaire.

D'un point de vue hydrodynamique, la couche de liquide adjacente à l'interface, peut être en équilibre stable ou instable selon l'alliage considéré. En solidification vers le haut, le gradient de température est en général stabilisant (liquide chaud léger au-dessus du liquide froid lourd). Par contre, le gradient de concentration peut être, soit stabilisant, soit déstabilisant, suivant les valeurs du coefficient de partage  $k$  et du rapport des masses volumiques du soluté et du solvant.

La question qui se pose alors, est de connaître la stabilité hydrodynamique de la couche de liquide adjacente à l'interface quand les deux gradients longitudinaux (température et solutal) sont antagonistes. En fait, si on considère le nombre de Lewis, défini comme le rapport de la diffusivité thermique à la diffusivité solutale  $Le = D_{th} / D_L$ , on constate que pour la majorité des alliages métalliques  $Le$  est de l'ordre de  $10^4$ . Par conséquent, les effets associés à la concentration en soluté sont prédominants par rapport aux effets dus à la température.

### *b) Influence sur la solidification directionnelle*

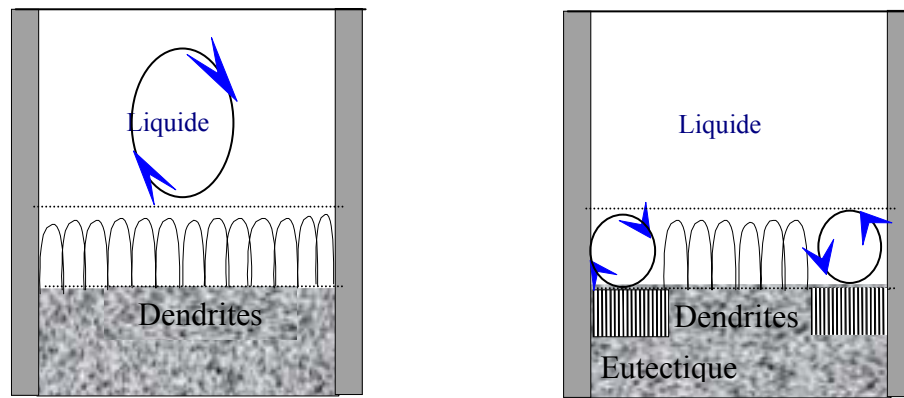
En présence de convection dans le liquide, la complexité du problème s'accroît en raison du couplage des bilans volumiques de chaleur et de soluté avec l'hydrodynamique qui, au travers des équations du mouvement, est fortement non-linéaire. Dans le liquide, le transport de chaleur et de soluté se fait alors par diffusion mais aussi par convection.

D'un point de vue physique, il est clair que la présence de ces courants convectifs au voisinage de la microstructure interfaciale modifie plus ou moins fortement les bilans locaux de soluté et de température. Ceci explique l'influence des effets convectifs sur l'instabilité morphologique. Mais réciproquement, la présence de la microstructure, en particulier pour les régimes de dendrites développées, modifie la vitesse de convection.

Pour la plupart des matériaux, les études de Coriell *et al.* [21, 23], Hurle *et al.* [22] ont clairement établi que les deux instabilités, convective et morphologique, interagissent faiblement à cause de la grande différence d'échelles caractéristiques de longueur. Néanmoins, il peut exister quelques cas limites pour lesquels le couplage hydrodynamique-morphologie est fort, en particulier quand  $k \rightarrow 0$  [24, 25] ou quand la convection est d'origine thermique [25].

Expérimentalement, la convection thermosolutale provoque des effets non négligeables sur la solidification dirigée:

- En présence de convection dans le bain fondu, le réseau cellulaire présente des irrégularités de taille [27]. Quand on s'affranchit de la convection par exemple en microgravité, les réseaux cellulaires sont plus réguliers et plus homogènes [28]. Ils ne sont cependant jamais parfaits car il n'y a pas de taille unique sélectionnée mais toujours une bande de longueurs d'ondes permises [9]. D'une manière générale, la convection provoque une diminution de la longueur d'onde caractéristique des instabilités à l'interface [29, 30].
- De plus, une modulation macroscopique du front est généralement observée représentative des mouvements hydrodynamiques adjacents au front de solidification [29, 31].
- Enfin, la convection thermosolutale (solutale (léger en bas) ou thermique (chaud en bas)) crée un mouvement hydrodynamique à l'échelle de tout l'échantillon (figure 1.12 a), qui entraîne une variation importante de concentration le long de l'échantillon (ségrégation longitudinale). Par contre, on mesure peu de ségrégation radiale malgré la modulation macroscopique observée [9, 29].



**Figure 1.12 :** Mouvements hydrodynamiques associés aux deux types de convection  
a) Convection liée aux gradients longitudinaux b) Convection liée aux gradients radiaux.

## 2.2 Convection d'origine radiale

### a) Origines de la convection radiale

Afin d'éviter a priori la convection thermosolutale durant la solidification directionnelle, les expériences peuvent être effectuées dans un mode thermiquement et solutalement stable, ce qui est le cas lors de la solidification dirigée vers le haut d'un alliage binaire dont le soluté, rejeté au cours de la solidification, est plus lourd que le solvant (cas de l'alliage utilisé dans nos expériences Al-Ni 3,5%pds). Néanmoins, même dans cette configuration, des résultats expérimentaux ont montré que de forts mouvements de convection pouvaient encore perturber profondément la solidification et donc la structure [30, 32, 33, 34].

Cette convection est induite par la différence des conductibilités thermiques de la phase solide, de la phase liquide et du creuset, entraînant une courbure de l'interface solide-liquide au niveau du contact avec le creuset. Il existe alors des gradients résiduels radiaux de température et de concentration qui sont à l'origine de mouvements convectifs. Au cours de la solidification, le soluté dont la densité est plus élevée que celle du solvant est rejeté à l'interface solide-liquide et s'accumule continuellement dans les dépressions de l'interface (à la périphérie dans le cas de l'alliage Al-Ni 3,5%pds). L'augmentation de concentration dans la dépression déplace la température d'équilibre vers des températures plus basses ( $k < 1$ ), augmentant encore plus l'effet de courbure initial par refusion.

### b) Effets de la convection radiale sur la solidification dirigée

La convection radiale induit des rouleaux convectifs confinés dans une zone "tampon" adjacente à l'interface solide-liquide (figure 1.12 b). Ces mouvements hydrodynamiques induisent principalement:

- Des gradients de microstructures de l'interface (*clustering*) associés aux gradients radiaux de concentration. La microstructure le long du front n'est alors plus uniforme. Par exemple, pour des alliages succinonitrile - acétone, Noël *et al.* [34] ont observé une rampe dans le niveau d'instabilité et donc un gradient de la taille des microstructures. Un effet similaire a été remarqué dans le cas des alliages hypo et hyper - eutectique Al - Cu par Dupouy *et al.* [30, 35]. Dans ce dernier cas, l'effet de gradient de microstructures (phase dendritique  $\alpha_{(Al)}$  et phase eutectique) est beaucoup plus spectaculaire à cause de la phase eutectique.
- De plus, la convection d'origine radiale provoque une courbure importante du front de solidification qui augmente au cours de la solidification (*steepling*). Cet effet, mis en évidence par Burden *et al.* [32] dans le cas des alliages Al - Cu 10% pds, ou encore par Nguyen Thi *et al.* [36], disparaît pour des vitesses élevées de croissance.

- Une analyse en ordre de grandeur des équations de transport de soluté a été proposée par Dupouy *et al.* [3]. Dans cette analyse, le transport de soluté ne dépend de la convection que par l'intermédiaire du nombre sans dimension  $\Gamma$ . Ce nombre est le rapport de la vitesse de convection  $U$  sur la vitesse de solidification  $V$

$$\Gamma = \frac{U}{V}.$$

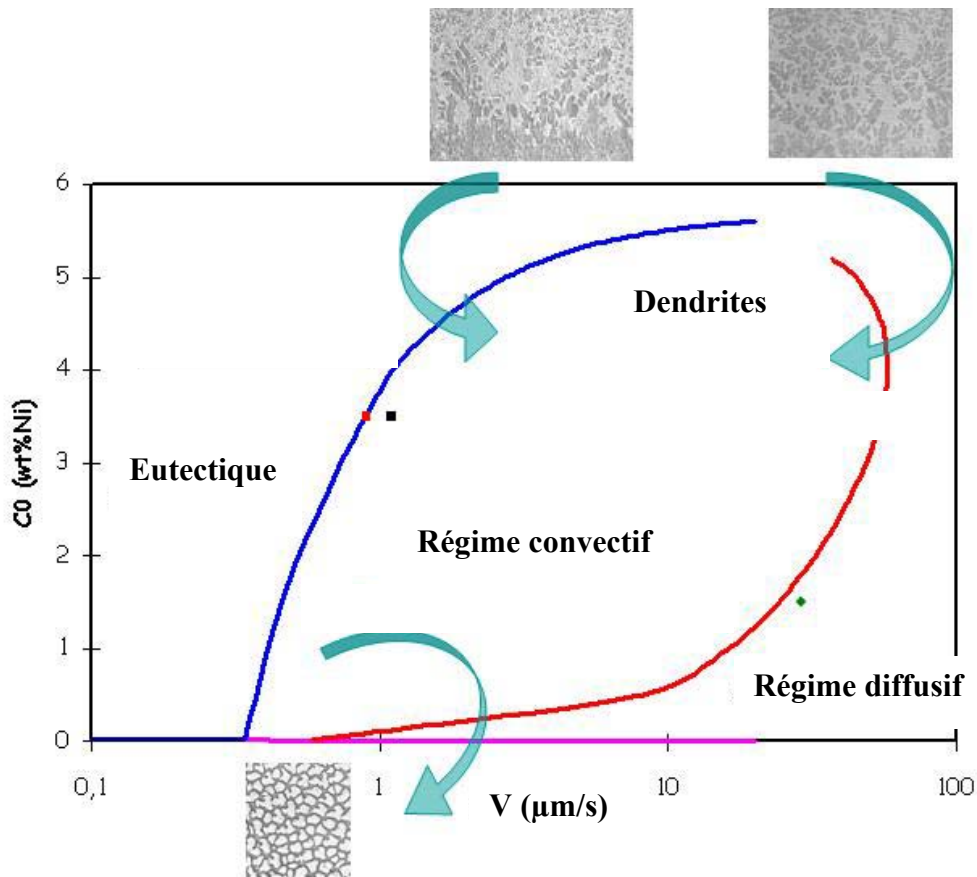
La vitesse interdendritique  $U$  de la convection naturelle d'après Dupouy *et al.* [3] est donnée par

$$U = \beta_C g \frac{GX^*K}{m_L \nu},$$

où  $\beta_C$  représente le coefficient de dilatation solutale,  $\nu$  la viscosité cinématique,  $m_L$  la pente du liquidus,  $g$  l'accélération de l'apesanteur,  $G$  le gradient de température axial,  $K$  la perméabilité dans la zone pâteuse et  $X^*$  une longueur caractéristique de la zone pâteuse.

Sur la figure 1.13, les différents régimes obtenus en fonction des paramètres  $V$  et  $C_0$  sont représentés. La courbe rouge représente le cas où  $\Gamma = 1$ , dans le cas où  $\Gamma < 1$ , un régime quasi-diffusif apparaît et l'écart de la fraction liquide par rapport à ce qu'elle serait en diffusion pure, est de l'ordre de  $\Gamma$ , dans le cas où  $\Gamma > 1$ , la fraction liquide augmente pour des températures décroissantes, ce qui signifie que les dendrites refondent. Le réseau dendritique peut alors se dégrader localement, laissant la place à des ségrégations.

- Enfin, la convection ayant lieu dans une zone tampon proche du front de solidification, il n'y a pas de mélange avec le cœur du liquide. On s'attend donc à avoir peu de macroségrégation longitudinale malgré l'intensité de la macroségrégation radiale.



**Figure 1.13:** Carte de microstructure montrant la forme de la microstructure en fonction de la concentration et de la vitesse de solidification d'après [3].

### 3 Solidification sous l'effet d'un brassage externe

#### 3.1 Influence d'un champ de force extérieur

On peut espérer contrôler, dans une certaine mesure, la qualité du produit par la maîtrise des écoulements présents dans la phase liquide. Plusieurs moyens extérieurs (brassage mécanique, électromagnétique...) ont été utilisés. Ils produisent des écoulements forcés dans le bain liquide et dans la zone pâteuse qui ont un effet important sur les propriétés de cette zone modifiant les conditions de solidification. Un certain nombre d'études théoriques sur l'effet de la convection forcée ou naturelle sur la solidification dendritique ont montré que la couche solutale, en avant de la pointe de la dendrite, est fortement perturbée. Les résultats montrent que, plus la convection est importante, plus la taille de la couche solutale diminue [37]. En effet, la convection tend à homogénéiser aussi bien la température que la concentration à la pointe de la dendrite [38], donc à redistribuer le rejet de soluté en changeant les phénomènes d'accumulation. La vitesse de la pointe de la dendrite s'accroît donc avec la vitesse du fluide [37, 39]. Mise à part leur influence sur la direction de croissance des



dendrites [40, 41], ces homogénéisations solutales et thermiques autour des dendrites ont l'avantage, dans certains cas, de limiter la macroségrégation, d'éviter la formation de porosité et d'affiner la structure [42].

Nous allons brièvement commenter les différentes méthodes utilisées dans la littérature récente pour brasser le bain liquide ainsi que leurs effets sur la solidification dirigée. Nous nous intéresserons plus particulièrement au brassage par champ magnétique glissant que nous avons utilisé.

### 3.1.1 Brassage mécanique (vibrationnel)

L'avantage de ce type de brassage est le fait qu'il peut s'appliquer à tous les matériaux métalliques ou autres (alliages transparents, poudres...). Deux types de vibrations mécaniques peuvent être distinguées: axiales et rotatives.

#### *a) Vibration axiale*

Des expériences de solidification ont été menées par Nguyen Thi *et al.* [43] sur les alliages binaires Al-Ni à 1,5% et 3,5% pds en Ni pour des valeurs de gradients de température variant entre 20 et 50 K.cm<sup>-1</sup> et des vitesses de tirage comprises entre 0,3 et 12 μm.s<sup>-1</sup>. Le mouvement est créé dans le bain liquide en faisant vibrer le creuset. Les paramètres de référence pour analyser l'effet des vibrations sont la fréquence de vibration et l'amplitude.

Les premiers résultats ont montré qu'il existe un effet sur la croissance dendritique mais aucun effet notable n'a été observé en régime de croissance cellulaire ce qui confirme l'importance de la zone pâteuse. A partir d'un niveau de vibration suffisant, Nguyen Thi *et al.* [43] ont constaté le passage d'une structure colonnaire dendritique vers une structure fragmentée.

#### *b) Vibration par rotation, (Accelerated Crucible Rotation Technique)*

On impose un mouvement de rotation au creuset, ce qui peut induire trois types d'écoulements dans le bain liquide (Couette, Ekman et spirale) [44, 45, 46]. Le creuset peut atteindre des vitesses de rotation de 100 à 400 tours par minute. Cette rotation peut être effectuée soit en rotation simple, soit en alternant le sens de rotation et en imposant un signal (trapèze, sinusoïde, triangle...). Des études [46, 47] ont montré que l'écoulement induit par cette méthode ainsi que son effet sur la microstructure dépendent du niveau de convection. Lors de la solidification d'alliages transparents (SCN éthanol), Mao *et al.* [47] ont mis en

évidence trois domaines différents en fonction des caractéristiques du brassage paramétrées par le nombre de Reynolds (rapport entre les forces d'inertie et les forces visqueuses)

$Re < 40$ , l'espacement primaire diminue (cellules et dendrites),

$Re > 40$ , passage du front dendritique ou cellulaire vers un front plan,

$Re \sim 500$ , régime instable (très turbulent) avec une augmentation de l'espacement primaire (dendrites) due à la fragmentation.

### 3.1.2 Brassage électromagnétique

Le mécanisme du brassage électromagnétique est basé sur la création d'une force de Laplace dans les matériaux conducteurs, provoquant l'apparition d'une circulation forcée dans la partie liquide. En effet, si l'on considère un échantillon métallique entouré d'une bobine d'induction, la circulation d'un courant électrique  $\mathbf{j}$  dans les spires d'induction, crée un champ magnétique qui pénètre dans l'échantillon et engendre un courant induit (courant de Foucault),  $\mathbf{j}_{ind}$ , dont le sens est opposé à  $\mathbf{j}$ . L'interaction entre le courant induit et le champ magnétique  $\mathbf{B}$  qui est la somme des champs induits par  $\mathbf{j}$  et  $\mathbf{j}_{ind}$ , crée la force de Laplace [48] :

$$\mathbf{F} = \mathbf{j}_{ind} \times \mathbf{B}. \quad (1.29)$$

Dans le cas particulier des systèmes à courant alternatif, le courant induit et le champ magnétique ne sont présents que dans une portion du domaine métallique, la peau électromagnétique, d'épaisseur :

$$\xi = 50\sqrt{\rho/f}, \quad (1.30)$$

où  $\rho$  désigne la résistivité électrique du matériau en  $\mu\Omega\text{cm}$  et  $f$  la fréquence du courant. Le mouvement du liquide est alors créé par l'inhomogénéité de la force de Laplace le long de l'échantillon. Cette force varie selon le dispositif qui lui donne naissance (champ tournant, champ pulsant, champ glissant...).

#### a) Champ magnétique permanent

Considérons tout d'abord le cas de l'action d'un champ magnétique permanent sur un liquide conducteur. Ce champ magnétique permanent peut être créé soit par une bobine alimentée par un courant continu soit par un aimant. Il peut être utilisé pour freiner, voire rendre négligeable, la convection naturelle qui peut apparaître lors de la solidification d'alliages.

Laskar *et al.* [49] ont montré l'existence à l'intérieur de la zone pâteuse d'un courant thermoélectrique  $\mathbf{j}_{TE}$  qui, associé au champ magnétique permanent  $\mathbf{B}$ , donne naissance à une force de Laplace d'origine thermoélectrique (apparition simultanée d'un courant électrique et

d'un flux de chaleur en présence d'un gradient de température et d'un gradient de potentiel électrique) :

$$\mathbf{F}_{TE} = \mathbf{j}_{TE} \times \mathbf{B}. \quad (1.31)$$

Cette force engendre un mouvement à l'intérieur de la zone pâteuse, qui reste relativement localisé.

Les travaux de Lehmann *et al.* [50] montrent que l'application d'un champ magnétique uniforme permet d'éviter la ségrégation dans deux alliages Cu-Ag et Al-Cu en contrebalançant la convection naturelle à l'intérieur de la zone pâteuse. Un autre exemple d'effet sur la macroségrégation est étudié par Tewari *et al.* [51] dans le cas de l'alliage Pb-Sn 18%Pb, pour lequel la formation de "freckles" peut être supprimée en limitant la convection naturelle.

Ces études montrent l'importance de l'orientation du champ par rapport à la direction de croissance pour que l'effet de freinage soit effectif. De plus, cette technique est tributaire du pouvoir thermoélectrique du matériau. Rappelons que  $\mathbf{j}_{TE}$  dépend de la différence du pouvoir thermoélectrique des composés de l'alliage et que les études citées ci-dessus ont été faites avec des alliages possédant une assez grande différence de pouvoir thermoélectrique.

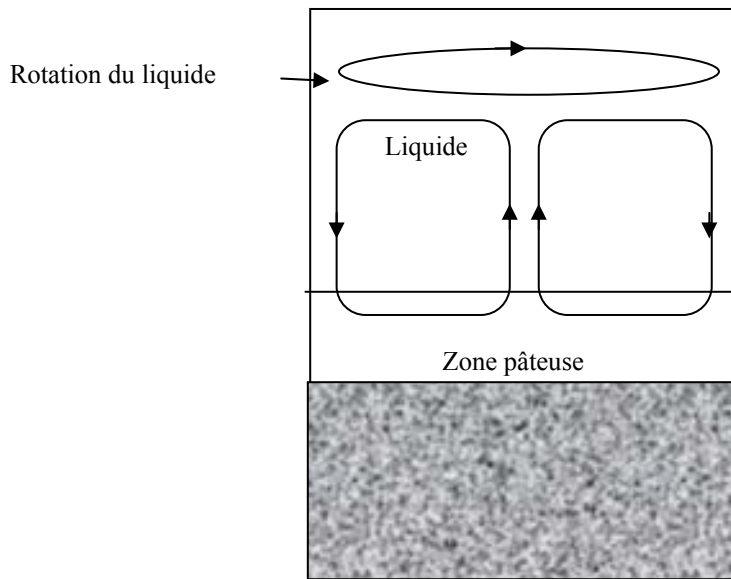
#### *b) Champ magnétique tournant*

##### Principe

Le brassage par champ tournant (*Rotating Magnetic Field* RMF) est le plus utilisé dans la métallurgie. Cette technique est basée sur le principe d'un moteur asynchrone. Le moteur est alimenté par un courant alternatif polyphasé. Le cas d'un moteur triphasé est le plus répandu car on utilise en général les trois phases du réseau, avec une fréquence de fonctionnement du moteur de 50 Hz. Chaque phase est décalée de  $2\pi/3$  dans l'espace et dans le temps.

##### Application à la solidification dirigée

L'application d'un champ tournant dans le liquide impose un mouvement de rotation toroïdal. Cette rotation induit à son tour des forces de pression centripètes sur les parois du creuset qui imposent un mouvement secondaire poloïdal (contenu dans des plans méridiens s'il demeure stable). Le sens (descendant près des parois et ascendant au centre de l'échantillon) est toujours celui indiqué sur la figure 1.14.



**Figure 1.14** : Ecoulement induit par un champ magnétique tournant.

Dans la zone pâteuse, l'écoulement poloïdal va de la paroi latérale vers le centre du l'échantillon [52], où il remonte dans le bain liquide en donnant naissance à l'intérieur de la zone pâteuse à des boucles de recirculation.

Des expériences de solidification dirigée [53,54] ont démontré l'efficacité du brassage avec un champ magnétique tournant, les particules fluides pouvant atteindre des vitesses de  $0.5 \text{ m.s}^{-1}$  pour un champ de 25 mT dans l'alliage Al-Si. Les boucles de recirculation déforment l'interface entre la zone pâteuse et le bain liquide, créant une zone de dépression au centre qui donne naissance à une macroségrégation radiale (présence d'un canal ségrégué de taille non négligeable dans le cas des alliages solutalement stables comme l'alliage Al-Ni).

Eckert *et al.* [54] ont montré que lors de la transition colonnaire équiaxe il apparaît une zone riche en eutectique qui favorise la CET. Les dendrites colonnaires sont plus vite bloquées par les grains équiaxes lorsque le champ magnétique tournant est introduit.

### *c) Champ magnétique glissant*

Le principe du champ glissant (*Travelling Magnetic Field* TMF)) est aussi basé sur celui du moteur asynchrone (champ tournant décrit ci-dessus). Il est devenu très classique dans la technologie des pompes à induction utilisées notamment pour déplacer du sodium liquide dans les réacteurs nucléaires surrégénérateurs. Le mouvement engendré par ces pompes est purement poloïdal donc très simple. Le champ magnétique glisse le long des génératrices du moteur, à la différence du champ tournant où le champ magnétique tourne le long d'un cercle. Par contre dans le cas du champ glissant, l'axisymétrie de l'écoulement n'est pas garantie au

delà d'une certaine intensité. Dans le cas du champ tournant, cette symétrie est garantie par l'effet gyroscopique du mouvement toroïdal.

Sur la figure 1.15, on a représenté les étapes successives qui permettent de passer d'un moteur asynchrone à un moteur tubulaire à champ glissant. Le moteur est alimenté par un courant alternatif polyphasé (trois phases). Après une première transposition (figure 1.15 b), on obtient le passage d'une force rotative (champ tournant) vers une force linéaire susceptible de pomper un mouvement poloïdal. Les paramètres principaux de ce brasseur électromagnétique sont la longueur d'onde  $\lambda$  (ou pas polaire) et la fréquence  $f$ , d'où l'on déduit la vitesse de synchronisme  $v = \lambda f$  (figure 1.15 c). Dans le cas de notre étude, nous avons choisi une géométrie tubulaire (figure 1.15 d) pour une meilleure adaptabilité au four de solidification dirigée cylindrique. Dans notre expérience, le moteur tubulaire est une bobine de Bitter, alimentée par le secteur (50 Hz).

#### Application à la solidification dirigée

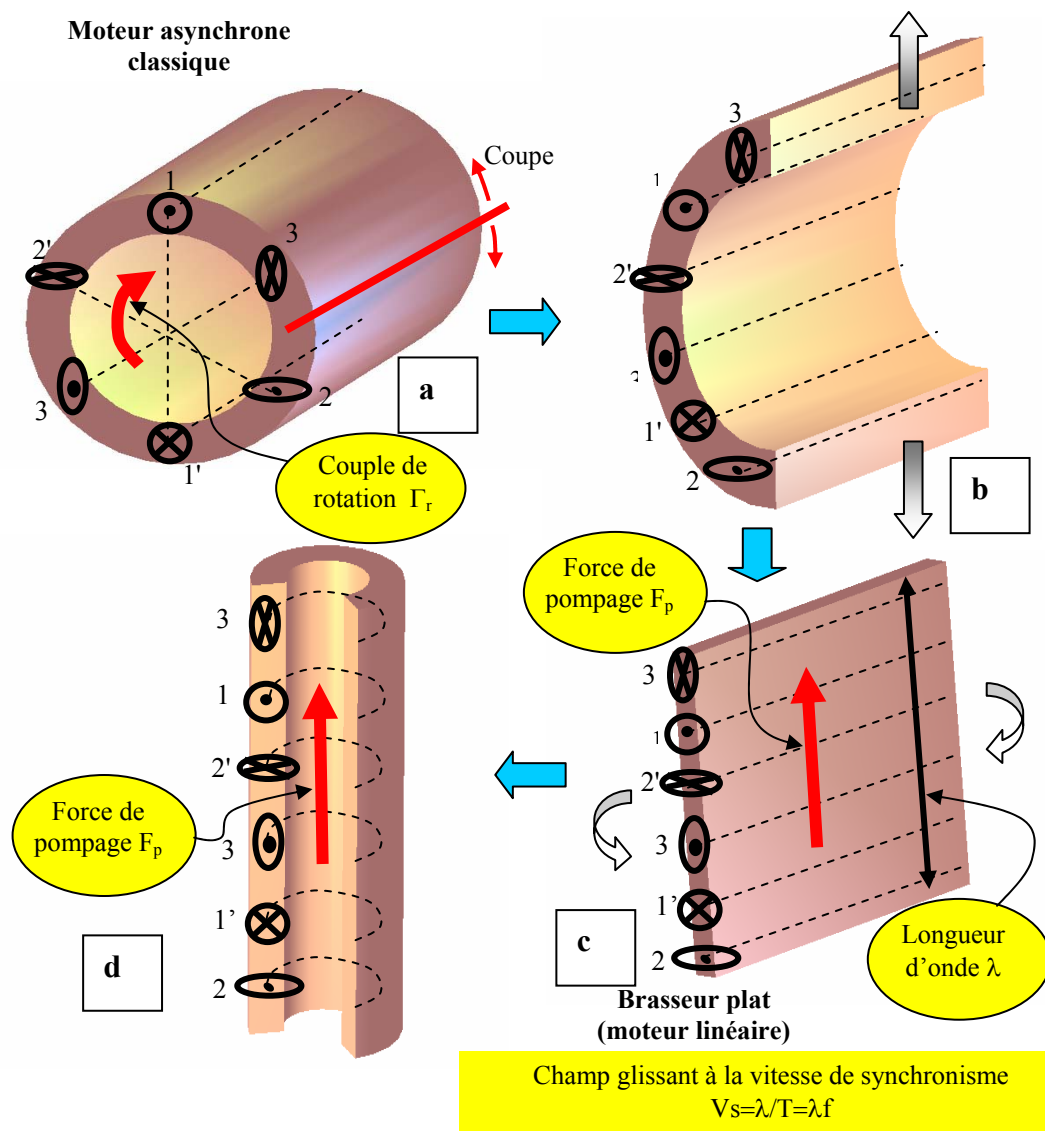
Plusieurs modèles numériques développés dans la littérature [55, 56, 57] couplent les équations de l'hydrodynamique à celles de la solidification dirigée. La plupart d'entre eux sont des modèles macroscopiques ne s'intéressant qu'à l'effet de la convection dans le bain liquide ainsi qu'à la forme du macro-front représenté par la température du liquidus.

Mazuruk [58], puis Yesilyurt *et al.* [59] montrent qu'ils parviennent à contrebalancer les écoulements dus à la gravité en appliquant un champ magnétique glissant dans le cas d'une solidification en front plan (semi-conducteur).

Medina *et al* [55] ont montré l'existence d'une zone de recirculation dans la zone pâteuse induite par les écoulements dans le bain liquide. Une amélioration fut apportée par Quillet *et al* [52] qui compléta ce modèle afin de s'intéresser aux effets d'un champ magnétique glissant sur les macroségrégations. Il montra que l'on pouvait contrôler la position des « *freckles* » induits par la déformation de la zone pâteuse par la convection forcée dans le cas d'un alliage Pb-Sn. Les prédictions de son modèle sont en accord qualitatif avec des études expérimentales [52]. Dagner *et al* [56] ont également développé un code qui repose sur le modèle de Heinrich et Poirier. Ils étudient l'effet d'un champ magnétique glissant sur la macroségrégation. Dans leur étude comparative entre la solidification d'un alliage d'Al-Si sous champ glissant puis sous un champ tournant, ils obtiennent un meilleur contrôle de la position de la macroségrégation radiale, un liseré eutectique périphérique ou un canal ségrégué au centre [56].

Tous ces modèles ont besoin d'être confrontés à des expériences. A l'exception de Mazuruk [58] qui a fait des expériences en front plan en utilisant des semi-conducteurs, à

notre connaissance, aucune expérience de solidification dirigée (avec zone pâteuse) en présence d'un champ magnétique glissant n'avait été réalisée auparavant.



**Figure 1.15** : Passage d'un champ magnétique tournant vers un champ magnétique glissant  
a) Moteur asynchrone b) Linéarisation des phases c) Moteur linéaire plat d) Moteur linéaire tubulaire.

## Références du chapitre I

1. W.W. Mullins et R.F. Sekerka, *The stability of the planar interface during solidification of dilute binary alloy*, Journal of applied Phys. **35**, (1964) 444
2. R. Trivedi, *Interdendritic spacing: Part II. A comparison of theory and experiment*, Met Trans A, **15A**, (1984) 977
3. M.D. Dupouy and D. Camel, *Comparative study of the columnar-Equiaxed Transition in microgravity and on ground during directional solidification of a refined Al-3.5 wt% Ni alloy*, Proceedings of J. Phys. IV France 11 (2001)
4. B. Caroli, C. Caroli et B. Roulet, *Solids far from Equilibrium fronts*, ed. E.C. Godreche. 1992
5. J.W. Rutter, and B. Chalmers, *A prismatic substructure formed during the solidification of metals*. Canad. J. Phys., **31** (1953) 15
6. W. A. Tiller, K. A. Jackson, J. W. Rutter and B. Chalmers, *The redistribution of solute atoms during the solidification of metals*, Acta Metallurgica, **1** (1953) 428
7. R.F Sekerka, *A Stability Function for Explicit Evaluation of the Mullins-Sekerka Interface Stability Criterion*, J. of Applied Physics **36** (1965) 264
8. K. Brattkus, and C. Misbah, *Phase dynamics in directional solidification*, Phys. Rev. Let. **64** (1990) 1935
9. Q. Li, H. Nguyen Thi, H. Jamgotchian and B. Billia, *Preferred-pattern formation during the initial transient in cellular solidification*, Acta. Metall. Mater., **43** (1995) 1271
10. A. Hellawell, S. Liu and S.Z. Lu, *Dendrite Fragmentation and the Effects of Fluid Flow in Casting*, JOM (1997), 18
11. C.J. Paradies, R.N. Smith, and M.E. Glicksman, *The influence of convection during solidification on fragmentation of the mushy zone of a model alloy*, Metall. Mater. Trans. A, **28A** (1997) 875
12. W. Kurz and D. J. Fisher, *Fundamentals of Solidification*, Trans. Tech. Pub. (1990)
13. M.D. Dupouy and D. Camel, *Convective patterns in directional columnar and equiaxed dendritic solidification of binary Al based alloys*, Recent Res. Devel. Crystal Growth, 2 (2000) 179

14. J.D. Hunt, *Steady state columnar and equiaxed growth of dendrites and eutectic*, Materials Science and Engineering, **65** (1984) 75-83
15. C.A. Siqueira, N. Cheung, and A. Garcia, Metall. Mater. Trans. A, **33A** (2002)2107
16. M. A Martorano, C. Beckermann and C.A Gandin, *A solutal interaction mechanism for the Columnar to Equiaxed Transition in alloy solidification*, Metall. Mater. Trans. A, **34A** (2003) 1657
17. C.Y Wang and C. Beckermann, *Prediction of Columnar to Equiaxed Transition during Diffusion-Controlled Dendritic Alloy Solidification*, Metall. Mater. Trans. A, **25A** (1994) 1081
18. C.A Gandin, Iron Steel Inst. Jpn., **40** (2000) 971
19. S.H. Davis, *Hydrodynamic interactions in directional solidification*, J. Fluid Mech., **212** (1990) 241
20. B. Caroli, C. Caroli, C. Misbah and B. Roulet, *Solutal convection and morphological instability in directional solidification of binary alloys ; effect of the density difference between the two phases*, J. de Phys. **46**, (1985) 1657
21. S. R. Coriell, M. R. Cordes and W. J. Boettinger R. F. Sekerka, *Convective and interfacial instabilities during unidirectional solidification of a binary alloy*, J. Cryst. Growth, **49** (1981) 13
22. D. T. J. Hurle and E. Jakeman A. A. Wheeler, *Effect of solutal convection on the morphological stability of a binary alloy*, J. of Cryst. Growth, **58** (1982) 163
- 23 S. R. Coriell, G. B. McFadden, R. F. Boisvert, M. E. Glicksman and Q. T. Fang, *Coupled convective instabilities at crystal-melt interfaces* , J. of Cryst. Growth, **66** (1984) 514
24. G.W. Young, and S.H. Davis, Phys. Rev. B, **B34** (1986) 3388
25. M. D. Dupouy, D. Camel and J. J. Favier, *Natural convective effects in directional dendritic solidification of binary metallic alloys : dendritic array morphology*, J. of Cryst. Growth, **126** (1993) 480
26. S. R. Coriell and G. B. McFadden, *Buoyancy effects on morphological instability during directional solidification*, J. Cryst. Growth, **94** (1989) 513
27. H. Nguyen Thi, B. Billia and L. Capella, *Cellular arrays during upward solidification of Pb-30 wt.% Tl alloys*, J.Phys. France, **51** (1990) 625
28. B. Billia, *Proc. 6th European Symposium on Material Sciences under Microgravity conditions*. Bordeaux, France (1986)



29. B. Drevet, H. Nguyen Thi, D. Camel, B. Billia and M. D. Dupouy, *Solidification of aluminium–lithium alloys near the cell/dendrite transition-influence of solutal convection*, J. Crystal Growth, **218** (2000) 419
30. M.D. Dupouy, D. Camel and J.J. Favier, *Natural convection in directional dendritic solidification of metallic alloys—I. Macroscopic effects*, Acta metall., **37** (1989) 1157
31. H. Nguyen Thi, B. Billia and H. Jamgotchian, *Influence of thermosolutal convection on the solidification front during upwards solidification* J. of Fluid Mech., **204** (1989) 581
32. M. H. Burden, D. J. Hebditch and J. D. Hunt, *Macroscopic stability of a planar, cellular or dendritic interface during directional freezing*, J. of Cryst. Growth, **20** (1973) 121
33. M. D. Dupouy, B. Drevet and D. Camel, *Influence of convection on the selection of solidification microstructures at low growth rates*, J. of Cryst. Growth, **181** (1997) 145
34. N. Noël, H. Jamgotchian and B. Billia, *In situ and real-time observation of the formation and dynamics of a cellular interface in a succinonitrile-0.5 wt% acetone alloy directionally solidified in a cylinder*, J. of Cryst. Growth, **181** (1997) 117
35. M. D. Dupouy and D. Camel, *Effects of gravity on columnar dendritic growth of metallic alloys: flow pattern and mass transfer*, J. of Cryst. Growth, **183** (1998) 469
36. H. Nguyen Thi, Y. Dabo, B. Drevet, M.D. Dupouy, D. Camel, B. Billia, J.D. Hunt and A. Chilton, *Directional solidification of Al–1.5 wt% Ni alloys under diffusion transport in space and fluid-flow localisation on earth*, J. of Cryst. Growth, **41** (2005) 654
37. B. Cantor and A. Vogel, *Dendritic Solidification and Fluid Flow*, J. of Cryst. Growth, **41** (1977) 109
38. S. R. Coriell, G.B. McFadden and R. F. Boisvert, *Effect of a Forced Couette Flow on Coupled Convective and Morphological Instabilities during Unidirectional Solidification*, J. of Cryst. Growth, **69** (1984) 15
39. R. Ananth and W. N. Gill, *Dendritic Growth in Microgravity and Forced Convection*, J. of Cryst. Growth **179** (1997), 263
40. Ch. Charbon, A. Jacot and M. Rappaz, *3D Stochastic Modelling of Equiaxed Solidification in the Presence of Grain Movement*, Acta Metall Mater, **42** (1994) 3953
41. A. Buchholz and S. Engler, *The influence of forced convection on solidification interfaces* Computational Materials Science **7** (1996) 221
42. T. Campanella, *Etude de l'effet du brassage électromagnétique sur les microstructures d'alliages cuivreux*, Thèse EPFL (2003)

43. H. Nguyen Thi, B. H. Zhou, G. Reinhart and B. Billia, *Influence of forced convection on columnar microstructure during directional solidification of Al-Ni alloys*, Proc. of the SG04 conference, Miskolc, Hongrie (2004)
44. H. J. Scheel, *Accelerated crucible rotation: a novel stirring technique in high temperature solution growth*, J. of Cryst. Growth, **13/14** (1972) 560
45. E. O. Schulz-Dubois, *Accelerated crucible rotation: hydrodynamic and stirring effect*, J. of Cryst. Growth, **12** (1972) 81
46. D. Ma et W.Q. Jie, *Observation of the periodic fluctuant dendritic structure in an Al-38wt%Cu hypereutectic alloy processed by ACRT-B method*, J. of Cryst. Growth, **210** (2000) 777
47. Y. Mao, J. Liu, W Jie et Y. Zhou, *Effect of the accelerated crucible rotation technique on dendritic growth morphology*, J. of Cryst. Growth, **171** (1997) 548
48. R. Moreau, *Magnetohydrodynamics* Dordrecht, Kluwer Academic Publishers, (1990)
49. O. Laskar, *Phénomènes thermoélectriques et magnétohydrodynamiques en solidification des alliages métalliques*, Thèse de doctorat INPG (1994)
50. P. Lehmann, R. Moreau, D. Camel and R. Bolcato, *Modification of interdendritic convection in directional solidification by a uniform magnetic field*, Acta. Mater, **46** (1998) 4067
51. S. N. Tewari, R. Shah and H. Song, *Effect of magnetic field on the microstructure and macrosegregation in directionally solidified Pb-Sn alloys*, Metall. Mater. Trans, **25A** (1994) 1535
52. G. Quillet, *Influence de la convection, naturelle ou force, sur l'apparition des mésoségrégations lors de la solidification des alliages métalliques*, Thèse INPG (2003)
53. A. Weiß, G. Zimmermann, R. Salber, and Z. Mbaya, *Microstructure Development in Solidification of Al-Si-Alloys under Magnetically Controlled Flow Conditions*, Proceedings of the Electromagnetic Processing of Materials International Conference Lyon, France (2003)
54. B. Willers, S. Eckert, U. Michel, G. Zouhar, *Effect of the fluid convection driven by a rotating magnetic field on the solidification of a PbSn alloy*, European Congress on Advanced Materials and Processes EUROMAT2003, Lausanne, Switzerland, (2003)

55. M. Medina, Y. Du Terrail, F. Durand, and Y. Fautrelle, *Channel segregation during solidification and the effects of an AC Travelling Magnetic Field*, Metallurgical and Materials Transactions B **35B**, (2004) 1
56. J. Dagner, M. Hainke, J. Friedrich and G. Müller, *Effects of time-dependent magnetic fields on directional solidification of AlSi7 alloys*, Proceedings of international congress EPM (2003)
57. A. Ciobanas, F. Baltaretu and Y. Fautrelle, *Ensemble averaged two-phase eulerian model for columnar/equiaxed solidification of a binary alloy*, Proc. of the SG04 conference, Miskolc, Hongrie (2004)
58. K. Mazuruk, *Control of melt convection using travelling magnetic field*, Adv. Space Res. 29, No. 4 (2002) 541
59. S. Yesilyurt, S. Motakef, R. Grugel, and K. Mazuruk, *The effect of the traveling magnetic field (TMF) on the buoyancy-induced convection in the vertical Bridgman growth of semiconductors*, J. of Cryst. Growth, **263** (2004) 80

# Chapitre II : Techniques expérimentales

## 1 Introduction

L'un des objectifs de cette thèse est de mettre au point un dispositif de solidification dirigée d'alliages à base aluminium et de lui associer un moteur linéaire permettant de créer un champ magnétique glissant. L'ajout d'un champ électromagnétique glissant permet d'imposer un mouvement du métal liquide à la fois beaucoup plus simple que le mouvement convectif naturel et surtout contrôlable de l'extérieur. Le support initial du four provient du CEA-Grenoble, et avait été conçu dans le cadre de la thèse d'Alboussière [1] pour la solidification d'alliages à base d'étain ( $\sim 230^\circ\text{C}$ ) en présence d'un champ magnétique uniforme (BRAHMS). Le point de fusion des alliages d'aluminium étant d'environ  $650^\circ\text{C}$ , une nouvelle conception interne a été nécessaire.

Les objectifs définis avant la phase de conception, sont de deux sortes. Tout d'abord, nous souhaitons que le gradient de température dans le liquide soit axial et aussi uniforme que possible. De plus, nous souhaitons que le champ magnétique glissant soit suffisamment intense pour engendrer dans le liquide une force de Laplace nettement supérieure à la force de frottement. Ces conditions sont requises pour réaliser des expériences de solidification dirigée avec des paramètres bien définis donc interprétables.

Le nouveau dispositif, qui comprend un four à gradient contrôlé ainsi qu'une bobine de Bitter capable de produire le champ magnétique glissant, est nommé BATMAF (*Bridgman Apparatus with a Travelling MAgnetic Field*).

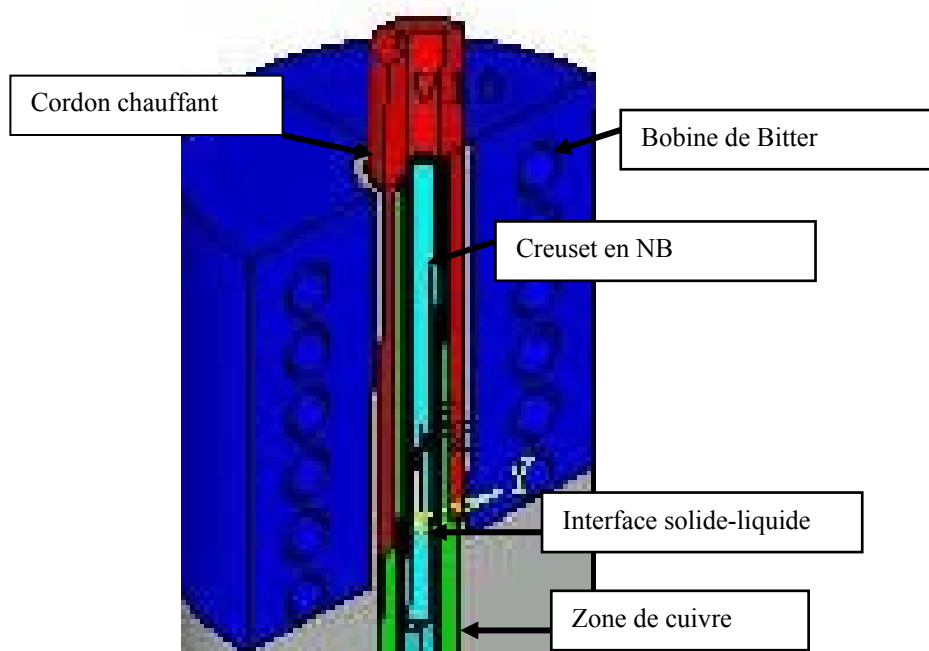
## 2 Conception du four et de la bobine

### 2.1 Le four à gradient contrôlé

Le four comprend une source chaude et une zone froide séparées par une zone de gradient contrôlé conçue afin de créer un gradient de température axial et uniforme dans l'échantillon liquide. L'intérieur du four est schématisé sur la figure 2.1. La source chaude est constituée par deux cordons chauffants enroulés à l'intérieur du four. Ces deux cordons sont alimentés par deux transformateurs régulés par un système *EUROTHERM* à deux entrées indépendantes. La zone froide est constituée d'une boîte à eau branchée en continu sur le circuit d'eau du laboratoire. La zone de gradient contrôlé est matérialisée par un tube composite conçu sur le principe des conductivités adaptées : la conductance thermique axiale

du tube reproduit celle de l'échantillon à solidifier, en l'occurrence l'aluminium qui conduit deux fois mieux la chaleur à l'état solide qu'à l'état liquide. Ce tube composite est constitué d'acier inoxydable et de cuivre. Pour tenir compte du doublement de la conductivité thermique de l'aluminium à la solidification, la section de cuivre est doublée au centre de la zone contrôlée. En effet, le cuivre, meilleur conducteur de la chaleur que l'acier inoxydable, canalise mieux le flux thermique axial. De plus, avec une bonne isolation constituée de matériaux *Microtherm*, les pertes radiales sont minimisées. La température de consigne des cordons chauffants est ajustée à 900°C pour que théoriquement la température au niveau du changement de section corresponde à la température de solidification de l'alliage et fixe la position de l'interface.

L'échantillon est placé dans un creuset en nitrure de bore, la solidification a lieu lors du déplacement contrôlé du creuset à l'aide d'une table de tirage. L'échantillon passe alors de l'état liquide (zone chaude) à l'état solide (zone froide) en présence d'un gradient de température contrôlé.



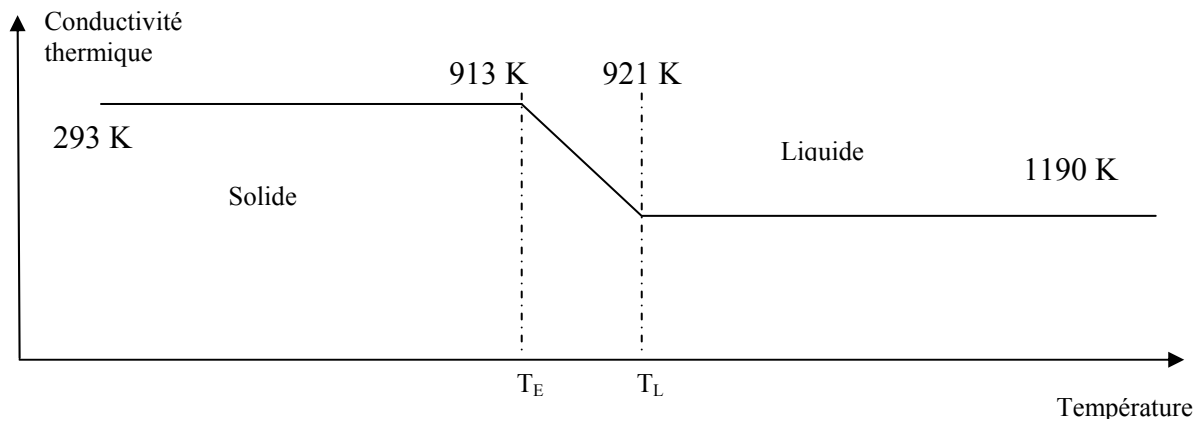
**Figure 2.1** : Représentation interne du four BATMAF.

### 2.1.1 Modélisation de la thermique

Les épaisseurs de cuivre et d'acier inoxydable doivent être ajustées de façon assez précise pour atteindre l'objectif du flux de chaleur quasi-uniforme. Ceci requiert une modélisation assez précise du champ de température dans les divers matériaux. Dans ce but, nous avons

utilisé le logiciel commercial FLUENT 6.0 au moment de la conception du four dans les conditions fixées par les hypothèses suivantes :

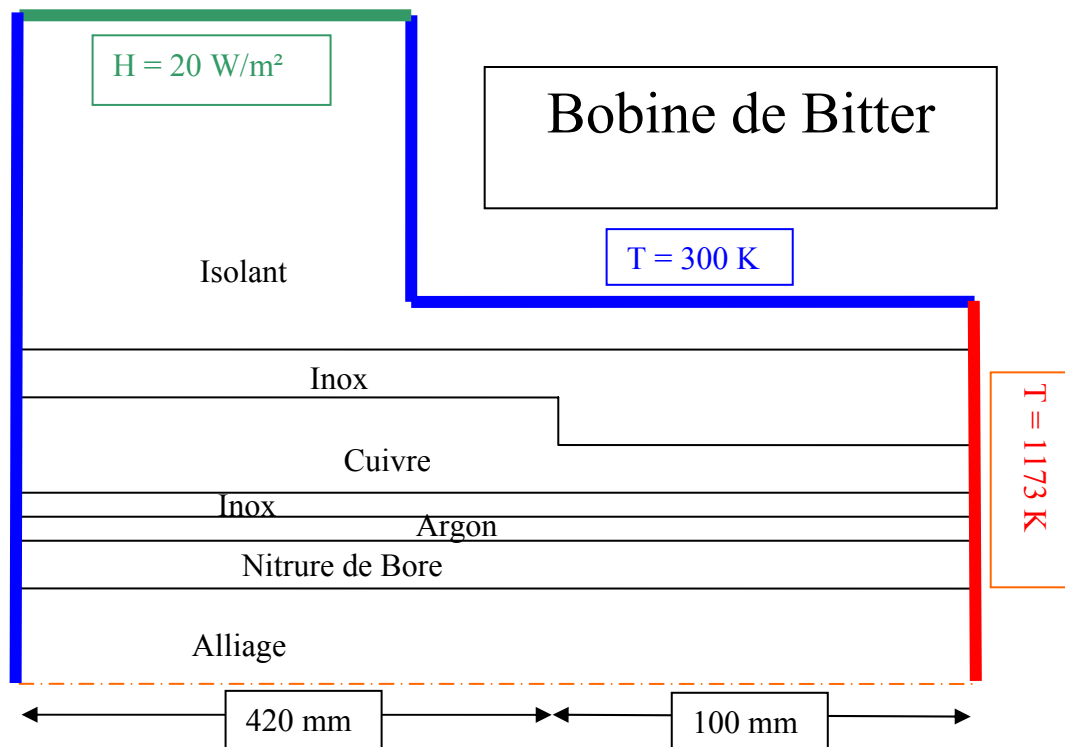
- Le domaine modélisé comprend uniquement une partie du tube composite.
- La boîte à eau et les éléments chauffants sont pris en compte en imposant une température constante à chaque extrémité.
- Nous supposons que le transfert de chaleur est uniquement dû à la conduction.
- Pour modéliser la variation entre les conductivités thermiques du solide et du liquide, au sein de la zone pâteuse, nous avons introduit une loi linéaire qui dépend de la température (figure 2.2).



**Figure 2.2** : Loi linéaire représentant les conductivités thermiques à l'intérieur de l'alliage.

- Nous imposons la température au niveau de la bobine de Bitter à 300 K car nous admettons que l'isolation '*Microtherm*' entre le four et la bobine est suffisamment efficace pour limiter les pertes de chaleur dues à la circulation d'eau imposée dans la bobine de Bitter.

L'intérieur du four est constitué de plusieurs tronçons cylindriques emboîtés les uns dans les autres. Sur la figure 2.3, nous représentons une géométrie simplifiée des différents éléments qui constituent le four ainsi que les conditions aux limites choisies pour notre modélisation. Le tube en cuivre permet le transport du flux de chaleur à l'intérieur du four. Les deux tubes en acier inoxydable assurent la protection contre l'oxydation du tube en cuivre.



**Figure 2.3** : Schéma de la géométrie interne de BATMAF utilisé pour la modélisation numérique.

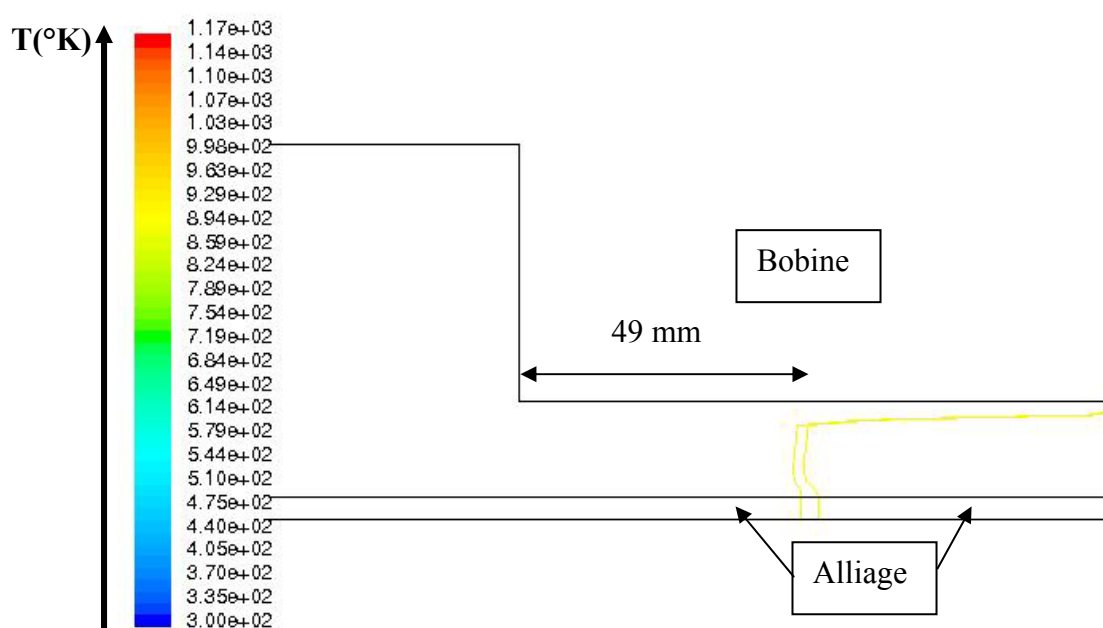
Sur la figure 2.3, les frontières bleues représentent les surfaces communes entre le four et les éléments refroidis avec de l'eau (boîte à eau, bobine de Bitter), dont la température est fixée à 300 K (condition de Dirichlet). La frontière en rouge, qui représente la frontière avec la zone contenant les cordons chauffants, est aussi modélisée par une condition de Dirichlet en fixant sa température à 1173 K. De plus, une condition à la frontière entre l'isolant et l'air ambiant est modélisée par un coefficient d'échange de chaleur (condition de Newman).

### 2.1.2 Résultats de la modélisation

Les surfaces isothermes qui vont nous intéresser sont celles comprises entre  $T_E=913$  K et  $T_L=921$  K c'est-à-dire, les isothermes qui délimitent la zone pâteuse ( $T_E$ : Température eutectique,  $T_L$ : Température liquidus de l'alliage). Elles doivent être aussi planes que possible pour limiter les effets radiaux. Elles doivent aussi être situées au niveau de la bobine de Bitter pour que la zone pâteuse et le liquide adjacent subissent le brassage électromagnétique.

Les résultats de la modélisation effectuée dans les conditions précédentes conduisent aux types de résultats présentés figure 2.4. La position des isothermes  $T_E$  et  $T_L$  est indiquée sur cette figure. Nous pouvons constater qu'elles se trouvent bien dans la zone d'action de la bobine de Bitter à une position de 49 mm du bord inférieur de la bobine. L'interface n'est pas

située au niveau du changement de section de la zone cuivre, elle est décalée vers la droite car les pertes de chaleur induites par le refroidissement de la bobine de Bitter ne sont pas négligeables. Pour déplacer les isothermes de températures vers la gauche, plusieurs solutions sont envisageables, soit augmenter la température imposée coté chaud, soit augmenter l'épaisseur de l'isolant situé sous la bobine de Bitter, ou encore choisir un isolant plus efficace. Si l'on souhaite utiliser la première option, c'est à dire augmenter la température de consigne, des simulations ont montré qu'il faudrait appliquer une température supérieure à la température critique de fonctionnement du cordon chauffant (1273 K) ce qui est bien sûr exclu. Pour la seconde option (augmentation de l'épaisseur de l'isolant), il faudrait un isolant de 20mm d'épaisseur d'après la modélisation. Or dans notre cas, l'épaisseur de l'isolant est limitée par le diamètre intérieur de la bobine de Bitter à 3,5mm (ce diamètre est imposé). Enfin, l'isolant '*Microtherm*' est parmi les meilleurs isolants du marché. C'est pourquoi les conditions retenues pour l'utilisation du four sont finalement celles décrites au début de ce paragraphe, malgré l'écart attendu entre l'épaule du tube de cuivre et la position de l'interface solide-liquide. La température de la zone chaude est fixée à 1173 K, celle de la zone froide est fixée à 300 K.

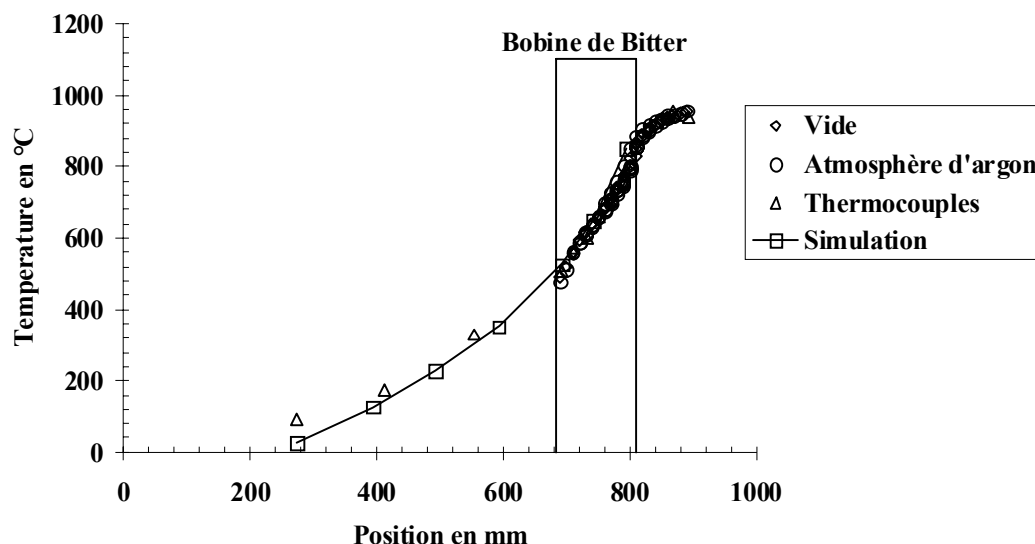


**Figure 2.4 :** Position des isothermes.

Après avoir validé la géométrie choisie précédemment, nous réalisons plusieurs expériences à l'aide de thermocouples placés à l'intérieur du four et sur le creuset, qui nous permettent de valider la modélisation de la thermique à l'intérieur du four. Nous avons effectué une première série d'expériences sous une atmosphère d'argon et une seconde sous



vide. La proximité entre les résultats expérimentaux et les résultats de la simulation numérique (figure 2.5) nous a paru satisfaisante.

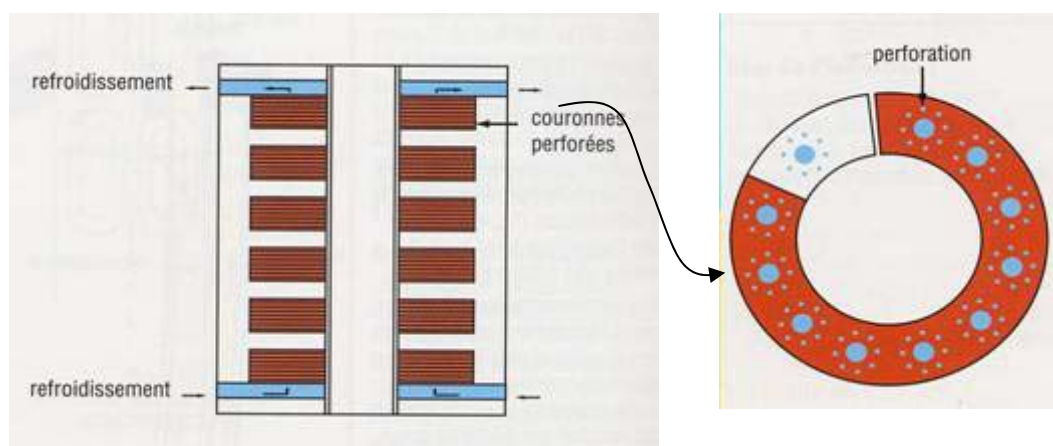


**Figure 2.5** : Comparaison des résultats numériques thermiques avec les mesures.

## 2.2 Champ magnétique

### 2.2.1 Principe de la bobine de Bitter

Autour du four est placée une bobine d'induction de longueur 125 mm. Il s'agit d'un moteur linéaire triphasé composé de six demi phases (figure 2.6).



**Figure 2.6** : Bobine de Bitter a) Vue d'ensemble des six demi phases b) Vue détaillée d'un disque de cuivre.

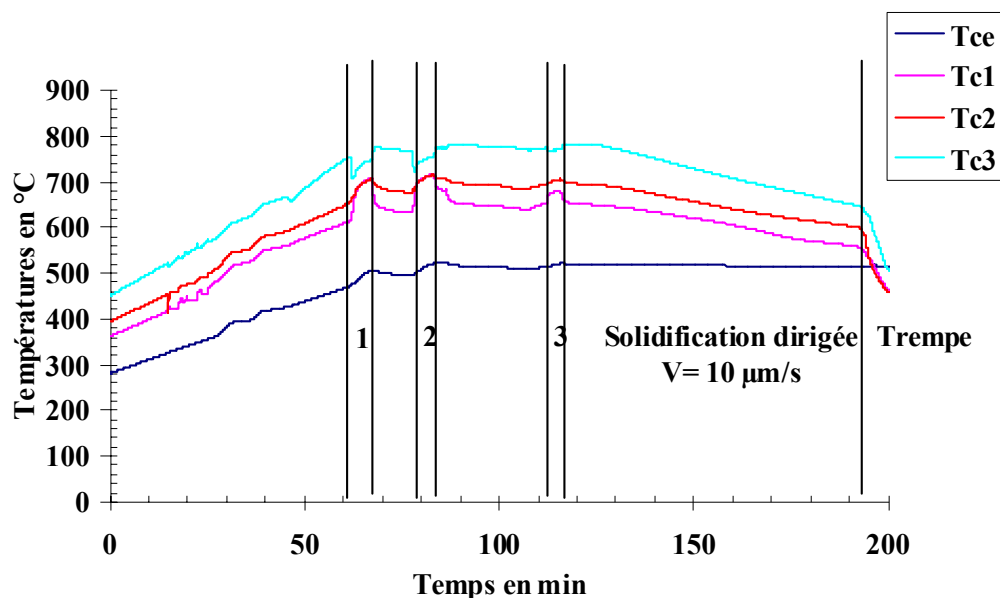
Cette bobine est une bobine de Bitter, dont le principe est le suivant. Des disques de cuivre sont accolés, séparés par des disques électriquement isolants (kapton), et en contact les uns

avec les autres que sur un petit secteur angulaire (figure 2.6b). Les spires de cuivre ainsi formées sont empilées avec, à chaque tour, un décalage angulaire de  $20^\circ$  qui correspond au secteur en contact électrique : le courant électrique effectue un tour de spire puis passe à la spire suivante par ce contact de secteur angulaire de  $20^\circ$ , et ainsi de suite. Dans cette bobine, les courants peuvent atteindre 1600A pour produire un champ maximal de l'ordre de 1T. Avec de telles intensités le refroidissement interne doit être efficace. L'eau de refroidissement circule sous pression contrôlée à travers de petits trous percés dans les disques de cuivre et dans les feuilles d'isolant. Ces trous, précisément alignés, forment une multitude de canaux parallèles de 1,25mm de diamètre (figure 2.6b). Cette configuration de canaux parallèles conduit à une perte de charge modérée. Le point important est que ces canaux nombreux et de petit diamètre forment une grande surface d'échange thermique, qui permet de limiter les risques de points chauds, donc les problèmes de corrosion, d'ionisation et éventuellement d'amorçage d'un arc électrique à travers l'eau. Les avantages de ce type de bobine sont nombreux. Le premier avantage est sa simplicité : il s'agit d'un empilement de deux type de pièces, des disques de cuivre et des disques de kapton. Ensuite, ce type de bobinage est très compact : la fraction volumique de cuivre est de l'ordre de 90%. [1]

Pour avoir un brassage, on injecte un courant dans la bobine qui permet de créer un champ magnétique dont la valeur maximale au centre de la bobine est utilisée comme paramètre des expériences dans toute la suite.

### **2.2.2 Effet joule induit : effet sur la thermique**

Etant donné que cette bobine est basée sur le principe de l'induction, on prévoit un effet sur le champ de température du four et donc de l'alliage, lié à l'effet Joule associé à ce courant induit  $j_{ind}$ .



**Figure 2.7** : Effet de différents champs magnétiques sur les mesures des thermocouples.

Sur la figure 2.7, nous constatons l'influence du champ magnétique sur les trois thermocouples ( $T_{c1}$ ,  $T_{c2}$ ,  $T_{c3}$ ) installés le long du creuset lors de tests préliminaires.  $T_{c1}$  et  $T_{c2}$  sont placés tout les deux au niveau de la partie solide de l'échantillon afin de voir l'apport en chaleur par conduction et  $T_{c3}$  est placé au niveau du liquide afin de rendre compte de l'homogénéisation de la température du bain liquide en présence de différents brassages électromagnétiques. Un quatrième thermocouple  $T_{ce}$  est placé à l'intérieur du four dans le tube en inox au niveau du changement de section du tube de cuivre (épaulement sur la figure), sa position n'évolue pas lors de nos expériences, il permet de rendre compte de l'apport par conduction aux constituants du four. Les températures de consigne du four restent fixes tout au long de l'expérience.

Des pics de température sont observés en réponse à l'application d'un brassage électromagnétique. Lorsqu'on applique un champ de l'ordre de 350 mT (zone 1 sur la figure 2.7), 170 mT (zone 2) et 70 mT (zone 3), l'apport de chaleur par effet Joule apparaît non négligeable, puisque le gradient de température dans le solide s'effondre (la courbe de  $T_{c1}$  est au même niveau que celle de  $T_{c2}$  dans le cas des brassages à 350 et 170 mT). Le brassage électromagnétique dans le bain liquide apparaît lui aussi très efficace car nous constatons une diminution quasi-instantanée de la température  $T_{c3}$  lors de l'application du champ magnétique : le thermocouple ressent les particules de fluides plus froides remontés vers le haut où le liquide est plus chaud (chauffage par le haut), jusqu'à une homogénéisation de la température du bain liquide. Ces mesures démontrent que le brasseur électromagnétique

perturbe le champ de température imposé par le four de façon significative. Lors de chaque expérience, nous utiliserons six thermocouples placés sur le creuset afin de mesurer le gradient de température.

Sur le tableau 2.1, nous avons reporté les gradients de température mesurés par des thermocouples placés sur les creusets lors de l'application de différents niveaux de brassage.

Champ magnétique (mT)	0	30	70	350
Gradient de température mesuré dans le liquide (K.cm <sup>-1</sup> )	30	24	13	9

**Tableau 2.1** : Evolution du gradient de température mesuré en fonction du champ magnétique maximal imposé.

### 2.2.3 Brassage électromagnétique

#### a) Calcul de l'épaisseur de peau

La bobine de Bitter existait déjà au laboratoire, où elle avait été utilisée à d'autres fins. Nous avons donc tenu à en modéliser les effets de façon à vérifier sa compatibilité avec notre four et avec notre objectif scientifique de brassage. L'objectif principal consistait à montrer que le champ créé par cette bobine provoque bien un brassage dans l'échantillon. Nous savons que les lignes de flux magnétiques sont confinées dans une épaisseur de peau, qui dépend de la fréquence du champ mais aussi de la résistivité du matériau étudié. Le calcul de l'épaisseur de peau est donné par la formule suivante :[2]

$$\xi = 50\sqrt{\rho / f} , \quad (2.1)$$

où  $\rho$  désigne la résistivité électrique du matériau en  $\mu\Omega\text{cm}$  et  $f$  la fréquence du courant ( $f=50\text{Hz}$ ). L'épaisseur de peau calculée pour les différents constituants du four est listée dans le tableau 2.2.

Matériau	Epaisseur de peau $\xi$ en mm	Epaisseur effective du matériau en mm
Cuivre	9,19	6
Inox	63,24	3
Alliage Al-Ni	11,55	4

**Tableau 2.2** : Epaisseur de peau électromagnétique comparée à l'épaisseur des matériaux utilisés lors de la conception du four.

Nous constatons que l'épaisseur de peau dans chacun des éléments du four est nettement plus grande que l'épaisseur effective de cet élément. Nous pouvons donc affirmer qu'il n'y

aura pas d'écrantage total du champ électromagnétique par les différents constituants du four. Par contre, un régime de brassage optimal ne peut pas être obtenu car il faudrait que l'épaisseur de peau dans l'alliage soit de l'ordre du quart du diamètre (ie 2mm) [2] or l'épaisseur de peau réelle dans l'alliage est de 11,55 mm.

Etant donné que nous sommes en présence d'un cas de brassage non optimum, nous avons modélisé ce brassage pour en démontrer l'efficacité. Pour cela, nous avons utilisé le logiciel commercial FEMLAB 6.0 qui possède des modules physiques et électrotechniques adaptés à ce genre de problèmes.

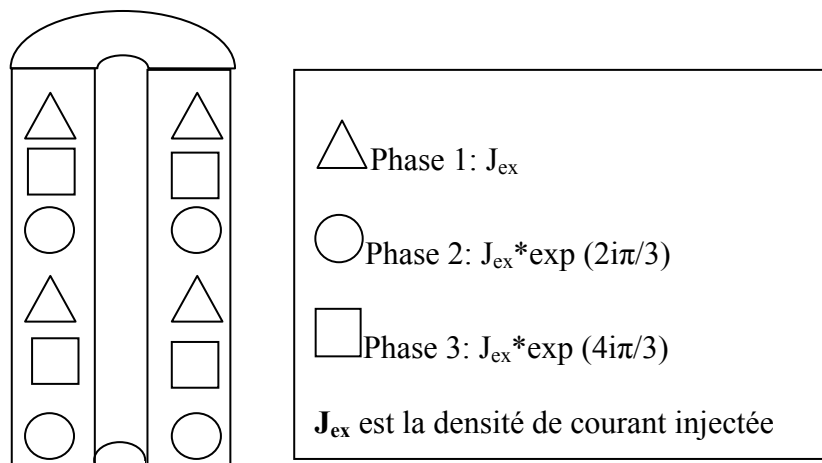
### *b) Modélisation du champ électromagnétique*

Nous avons choisi la même géométrie 2D axisymétrique que dans la modélisation thermique (§2.1.1). Etant donné que pour un champ magnétique glissant nous avons la possibilité de changer la direction de la force de Laplace, nous nous sommes placés dans un premier temps dans une configuration où la force est dirigée vers le bas dans l'épaisseur de peau (pour changer le sens de la force il suffit de permuter deux phases). Du point de vue de la modélisation des forces électromagnétiques, le résultat est identique quel que soit le sens de la force à l'exception du sens des boucles de convection forcée résultantes.

Nous avons fait les hypothèses suivantes :

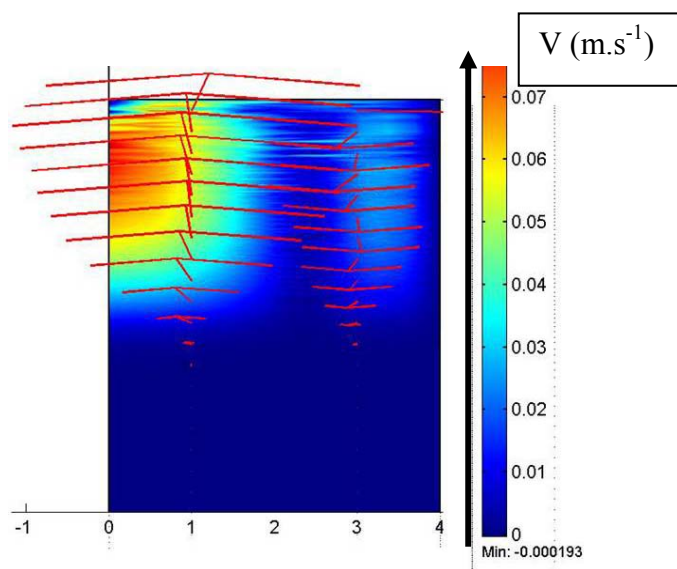
- Nous ne traitons pas les équations dues à la solidification. Seule l'hydrodynamique est étudiée.
- L'interface est traitée sans zone pâteuse.
- La vitesse est nulle sur les parois du creuset et sur le front de solidification.
- Sans champ magnétique, le liquide est au repos, la convection naturelle n'est pas prise en compte car négligeable devant le brassage forcé.

Sur la figure 2.8, nous avons représenté l'ordre des phases. Les trois phases sont représentées par des formes différentes (rond, triangle, carré), elles sont déphasées de  $2\pi/3$ . Chaque phase est constituée de deux demi-phases qui sont en opposition de signe.



**Figure 2.8** : Schéma représentant les phases dans la bobine et leur agencement.

Sur la figure 2.9, nous montrons la modélisation des vitesses dans le bain liquide induites par un champ électromagnétique de l'ordre de 70 mT. L'effet de la force de Laplace se manifeste par la présence d'une boucle de recirculation qui apparaît à l'intérieur du bain liquide. Une autre boucle existe par symétrie dans la deuxième moitié de l'échantillon. La taille des flèches est proportionnelle à la vitesse. La vitesse maximale du fluide dans la zone de recirculation est de l'ordre de  $10 \text{ cm.s}^{-1}$  à comparer à nos vitesses de tirage classique de l'ordre du  $\mu\text{m.s}^{-1}$  à quelques dizaines de  $\mu\text{m.s}^{-1}$ . Cette modélisation démontre de manière significative l'efficacité du brassage en utilisant cette bobine, malgré la petite taille de l'échantillon comparée à l'épaisseur de peau, et malgré l'écrantage partiel par les matériaux extérieurs à l'échantillon. Si l'on inverse le sens du brassage, les vitesses sont les mêmes mais avec des boucles en sens inverse.

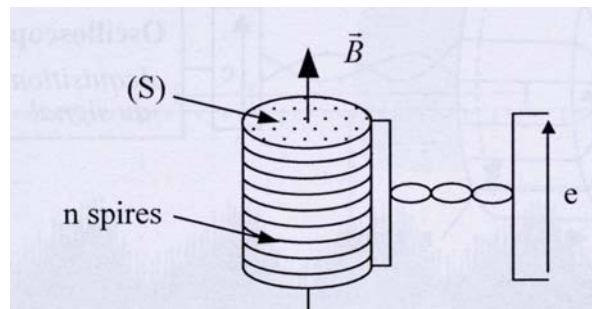


**Figure 2.9** : Vitesses induites par un champ magnétique de l'ordre de 70 mT dans le bain liquide. (Seule la moitié de l'écoulement est modélisée pour des raisons de symétrie).

Il faut toutefois noter que du point de vue de la solidification, l'écoulement le plus important est celui induit dans la zone pâteuse par le brassage du bain liquide [3]. Dans notre simulation numérique, nous n'avons pas tenu compte de ce mouvement très complexe mais l'écoulement dans la zone pâteuse découle de celui dans le bain fondu. Le mérite de cette simulation est d'avoir permis de s'assurer de l'existence d'un brassage forcé important au stade de la conception du dispositif. De plus, à partir de cette simulation numérique nous pouvons déterminer un ordre de grandeur de la vitesse des particules de fluide, qui pourra être comparée à celle calculée par le modèle plus élaboré de Ciobanas *et al.* [4], qui, lui, traite de l'effet du champ magnétique glissant sur la zone pâteuse.

### c) Mesure de la composante verticale du champ magnétique

La valeur de la composante verticale du champ magnétique  $B_z$  est mesurée à l'aide d'un capteur inductif à spires illustré sur la figure 2.10.



**Figure 2.10** : Schéma du capteur inductif à spires.

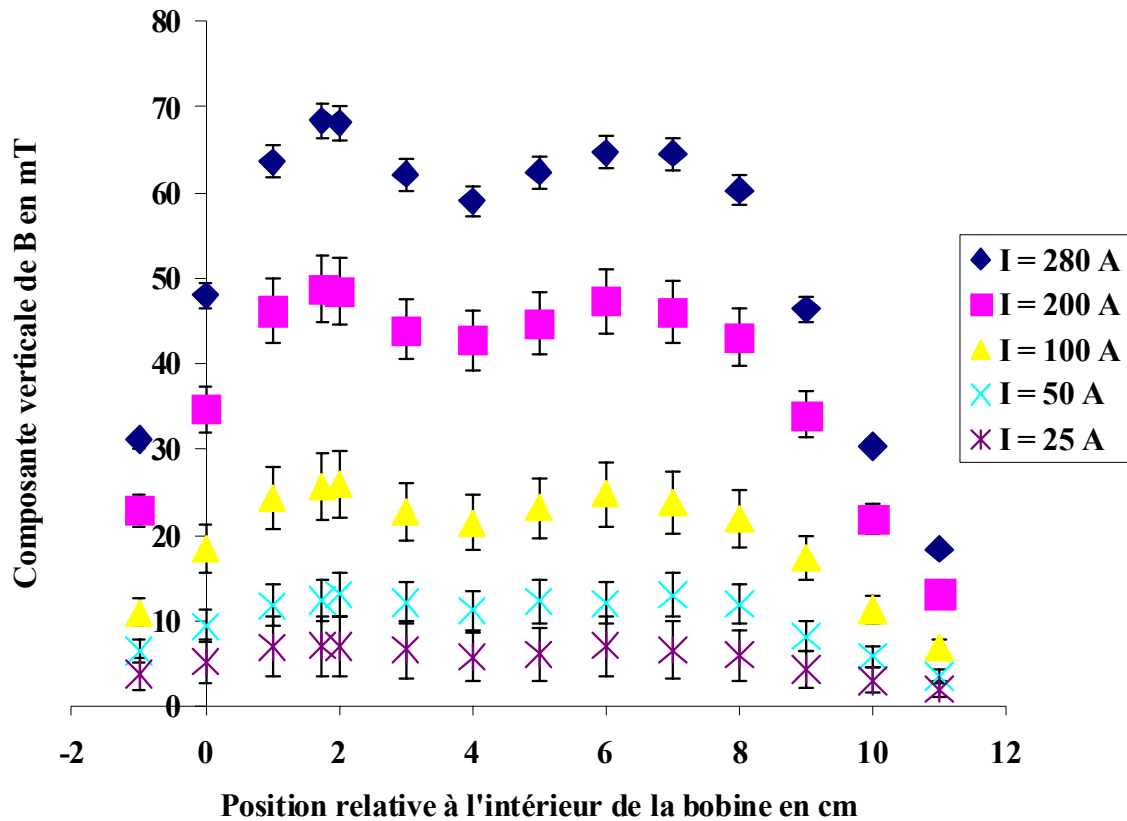
Le capteur est constitué d'une tige isolante autour de laquelle est enroulé un fil de cuivre de manière à obtenir  $n$  spires de section  $S$ . Si le champ magnétique  $\mathbf{B}$  est perpendiculaire à la section  $S$ , les spires deviennent alors le siège d'une différence de potentiel  $e$  telle que

$$e = n\omega B_z S \quad (2.2)$$

où  $\omega$  désigne la pulsation du champ magnétique. La mesure de la tension  $e$  au moyen d'un oscilloscope permet de déterminer la valeur de la composante du champ  $B_z$  en utilisant la relation 2.2. Il est à noter que la section  $S$  doit être assez petite pour obtenir un champ magnétique constant dans toute la section. Il convient également de torsader les amenées du capteur de manière à réduire les flux parasites.

Les mesures effectuées sous différentes intensités avec cet inducteur sont représentées sur la figure 2.11. Sur cette figure, l'axe des abscisses représente la position relative à l'intérieur de

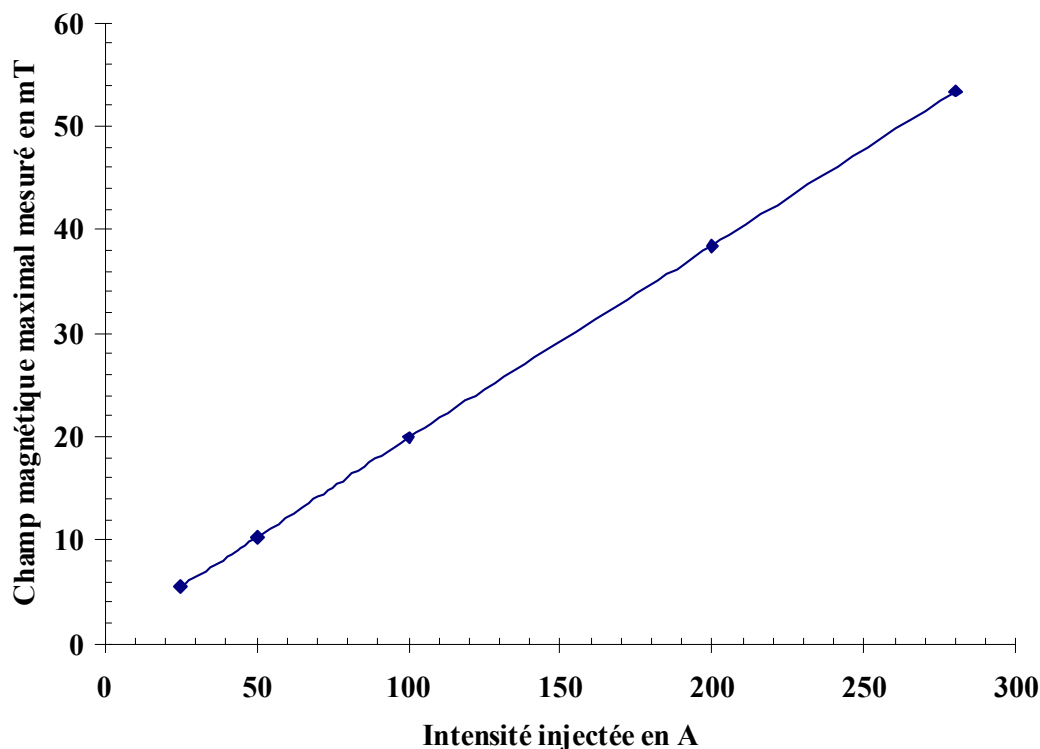
la bobine de Bitter, les mesures ont débuté 2 cm en amont du moteur pour observer les effets de bout de la bobine de Bitter. Pour des petites intensités de l'ordre de 25 A, la différence de potentiel  $e$  mesurée est très petite ce qui explique pourquoi l'incertitude est aussi grande. Les courbes passent par deux maxima qui correspondent aux pôles du moteur linéaire.



**Figure 2.11** : Mesures de  $B_z$  à l'intérieur de la bobine pour différentes intensités injectées.

A partir de ces courbes, nous pouvons déterminer la valeur maximale du champ électromagnétique correspondant à chaque intensité étudiée. On constate que le champ magnétique maximum mesuré varie linéairement avec l'intensité appliquée, et l'on pourra donc utiliser la courbe représentée sur la figure 2.12 pour connaître la valeur maximale du champ magnétique en fonction de l'intensité injectée dans le moteur. Nous utiliserons cette valeur comme paramètre pour nos expériences.





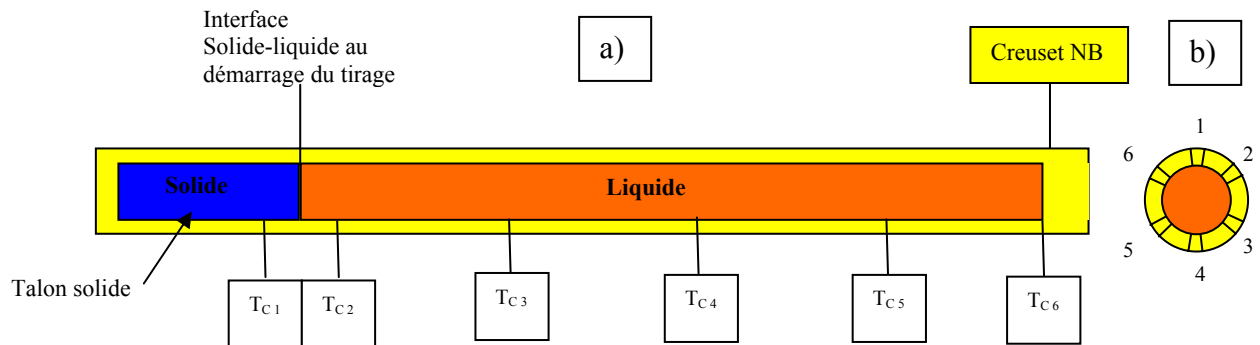
**Figure 2.12 :** Evolution du champ électromagnétique maximal mesuré en fonction de l'intensité injectée dans le moteur linéaire.

### 3 Protocole expérimental et caractérisation

#### 3.1 Choix de l'alliage et creuset

Nous avons choisi l'alliage Al-Ni 3,5%pds qui présente un intervalle de solidification faible (8 °C) et une fraction eutectique élevée, de sorte que la morphologie des cristaux soit figée à un stade précoce de son évolution lors de son incorporation au sein de l'eutectique. De plus, nous disposons d'un certain nombre de points expérimentaux pour des alliages Al-Ni affinés ou non en microgravité et en présence de convection naturelle [5, 6]. Dans les alliages affinés, des particules [7] ont été introduites pour favoriser la germination de grains équiaxes dans le bain liquide. Nous utilisons des alliages affinés et non affinés pour étudier l'effet de la convection forcée sur les deux types de croissance dendritique (équiaxe et colonnaire). Nous utilisons des creusets en nitrure de bore équipés de six thermocouples. Le nitrure de bore est souvent utilisé [5, 6] avec les alliages d'aluminium car il possède un excellent angle de mouillage avec l'échantillon. Les thermocouples sont répartis sur la paroi extérieure du creuset en diverses positions radiales et à différentes hauteurs (figure 2.13). Lors de nos

expériences, nous plaçons l'interface de solidification sous la bobine de Bitter en s'assurant de la présence d'un talon non fondu pour éviter les germinations sur le fond du creuset.



**Figure 2.13** : Position des thermocouples sur le creuset. a) vue longitudinale b) vue radiale

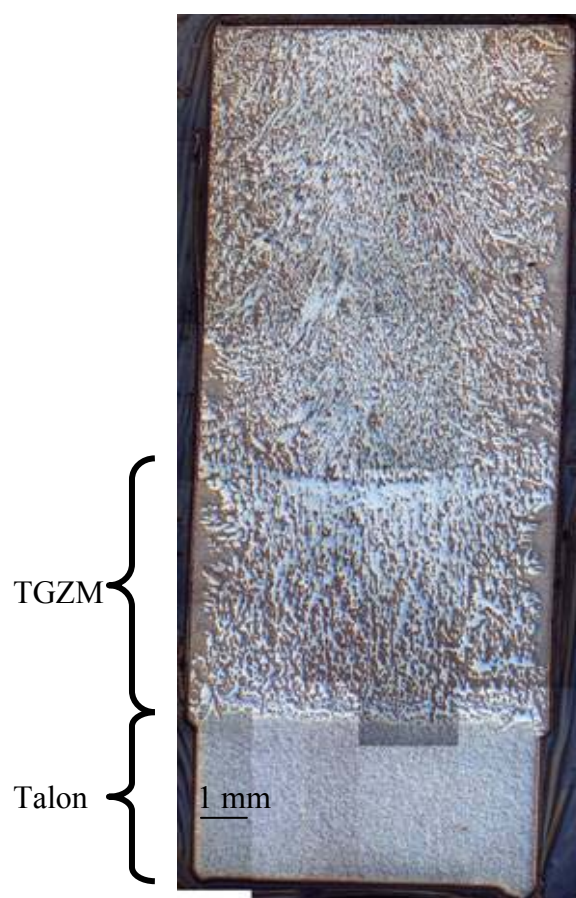
### 3.2 Dispositif de tirage

Le tirage est réalisé par un moteur pas à pas qui peut créer des déplacements allant de  $1\mu\text{m.s}^{-1}$  à  $250\mu\text{m.s}^{-1}$ . Dans toute cette étude, nous nous sommes placés à une vitesse relativement faible, de  $10\mu\text{m.s}^{-1}$ , puisque l'objectif est d'analyser le rôle de l'écoulement forcée sur la solidification. D'après le modèle de Hunt [8] (détaillé au chapitre I), nous sommes dans le domaine où nous devrions observer une transition colonnaire équiaxe pour des alliages affinis. De plus, des expériences préliminaires [9] ont montré que dans nos conditions de vitesse et de gradient de température, la structure observée est équiaxe.

### 3.3 Protocole expérimental

Les consignes de température sont toujours les mêmes mais le gradient de température dépend de la vitesse de tirage ainsi que du champ magnétique qui induit un effet Joule. On mesure le gradient de température à l'aide des six thermocouples répartis sur le creuset. Toutes les expériences sont effectuées avec le même protocole expérimental :

- Montée en température de l'enceinte ( $T_{\text{consigne}} = 900\text{ °C}$ , temps 3h)
- Fusion de l'échantillon sous atmosphère d'argon pressurisée (talon solide de 1 à 2 cm)
- Introduction du brassage électromagnétique
- Temps de stabilisation thermique 1h
- Solidification de 5 à 7 cm avec une vitesse de tirage de  $10\mu\text{m.s}^{-1}$
- Trempe sur 2 à 3 cm en augmentant la vitesse de solidification à  $250\mu\text{m.s}^{-1}$  et en balayant avec de l'hélium sous pression contrôlée.



**Figure 2.14** : Transitoire initial lors de la solidification dirigée d'un alliage affiné,  $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$ ,  $B = 30 \text{ mT}$ ,  $G = 24 \text{ K.cm}^{-1}$ .

Lors de la stabilisation thermique, Pfann [10] a montré l'existence d'une zone dont la densité en soluté est liée au temps de stabilisation. Il a appelé ce phénomène le *Thermal Gradient Zone Melting* (TGZM). On considère une goutte liquide riche en soluté incluse dans une matrice solide d'un solvant pur, le tout soumis à un gradient de température. Les parties opposées (chaude et froide) de cette goutte se trouvent à des températures et des concentrations différentes. Par conséquent, à l'intérieur du liquide, il va s'établir un flux de diffusion du soluté du bas vers le haut. La concentration de la partie froide de la goutte va donc décroître et, suivant le diagramme de phase, la température d'équilibre du liquide va croître [11]. Ceci entraîne un phénomène de solidification de la partie froide du liquide et, simultanément, un processus de fusion de la partie chaude. Par ce mécanisme, la zone liquide riche en soluté va migrer vers les régions de températures élevées. Il apparaît, lors de la stabilisation thermique, une zone dépourvue de soluté (si le temps de stabilisation le permet), celui-ci ayant migré sous forme de gouttes vers des régions plus chaudes comme cela a été observé par Nguyen Thi *et al.* [11]. Dans notre cas (figure 2.14), la durée de stabilisation ne

permet pas d'obtenir une zone totalement dépourvue de soluté mais on obtient malgré tout un état initial reproductible.

### 3.4 Caractérisation des échantillons

Après élaboration, l'échantillon se présente sous la forme d'un barreau d'une longueur moyenne de 140 mm et d'un diamètre de 8 mm. On dispose également des données thermiques (températures mesurées par les six thermocouples) enregistrées au cours de l'expérience. La caractérisation commence par un examen extérieur et se termine par l'exploitation des images traitées.

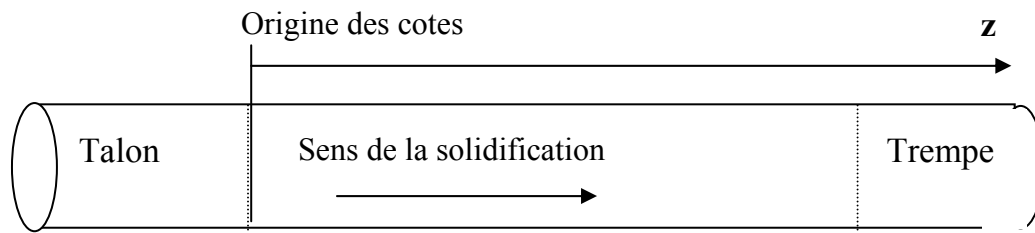
#### 3.4.1 Examen extérieur

L'examen extérieur de l'échantillon permet d'observer si il y a eu contact entre l'alliage et le creuset, de vérifier la position de la retassure marquant la limite de la zone refondue, et de mesurer la longueur totale de l'échantillon. Lors de l'observation des échantillons à la loupe binoculaire (figure 2.15), il apparaît clairement que la surface de certains échantillons est recouverte de porosités et de fissures. La présence de bulles lors de la solidification peut être à l'origine de ces porosités.



**Figure 2.15** : Observations à la binoculaire de bulles et de fissures.

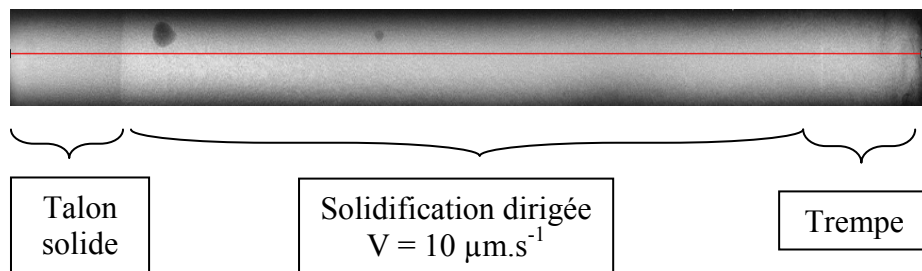
Une génératrice est tracée sur toute la longueur de l'échantillon, elle servira ultérieurement à pratiquer les coupes longitudinales. Le barreau se présente comme indiqué sur la figure 2.16.



**Figure 2.16** : Forme du barreau d'Al-Ni, sens de solidification et origine des côtes.

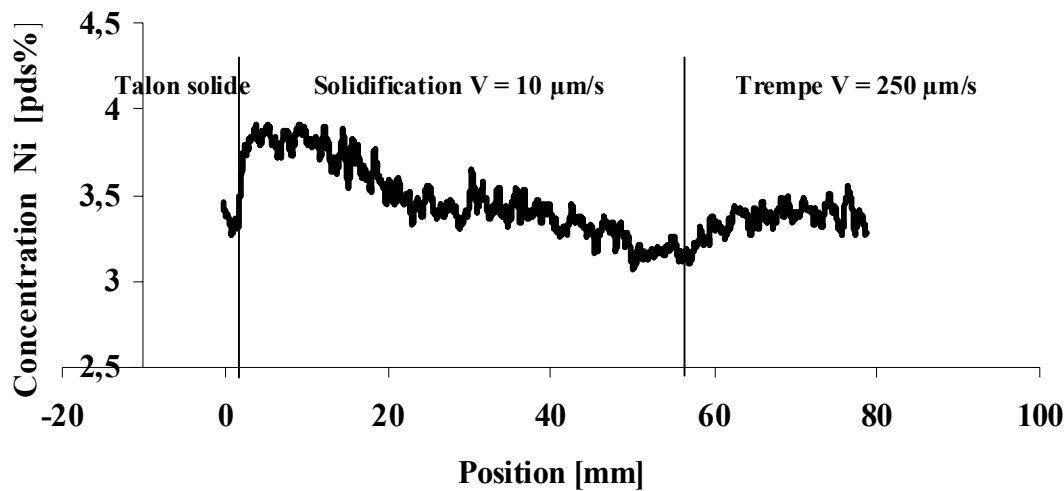
### 3.4.2 Radiographie X

Cette technique permet de révéler l'orientation des grains dendritiques, les marquages de l'interface de croissance (pour différentes conditions de solidification dans un même échantillon) et de connaître la répartition spatiale du soluté et des porosités. Sur la figure 2.17, qui est un négatif, l'élément qui a le plus grand nombre atomique apparaît plus clair, ici c'est le nickel ( $Z = 28$ ) qui est plus clair que l'aluminium ( $Z = 13$ ).



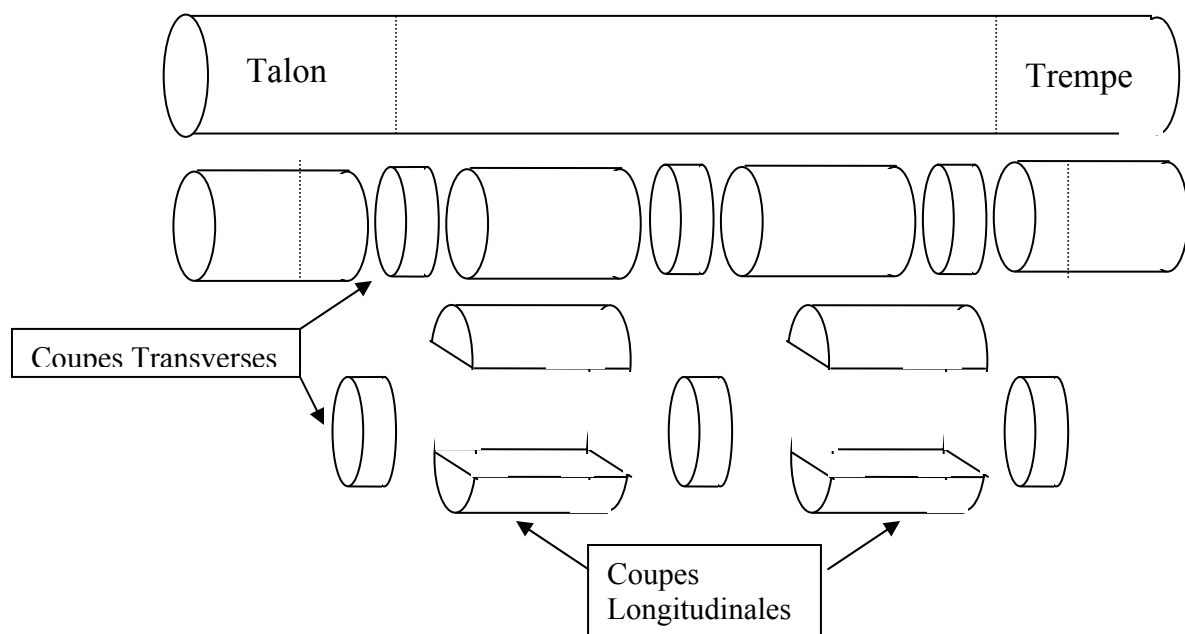
**Figure 2.17** : Etude densitométrique par radiographie X d'un échantillon élaboré à  $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$ ,  $G = 30 \text{ K.cm}^{-1}$ ,  $B = 0 \text{ mT}$ .

A partir de cette radiographie X, nous établissons une courbe de la concentration moyenne en Ni en fonction de la position (figure 2.18) à l'aide d'une analyse en niveaux de gris pour distinguer les différentes étapes de la solidification (talon solide, zone transitoire, zone stationnaire, et trempe). Les profils d'intensité doivent ensuite être calibrés afin d'être représentatifs des niveaux de concentration dans l'échantillon. Cette calibration doit être faite suivant les abscisses (côte le long de l'axe de l'échantillon) et suivant les ordonnées (intensité transmise – concentration en Ni). Les points sur lesquels il est possible de se caler sont, pour la côte, la limite de la zone non fondue et pour la concentration nominale (3.5pds%) dans la partie non fondue. La figure 2.18 représente la courbe calibrée de la concentration en fonction de la côte pour l'échantillon correspondant à la radiographie présentée figure 2.17.



**Figure 2.18** : Evolution de la concentration en Ni le long d'un barreau solidifié.

Nous déduisons de ces analyses par radiographie aux rayons X un plan de découpe de l'échantillon (figure 2.19), qui comprend une suite de coupes transverses et longitudinales, toutes les deux nécessaires à l'étude des macroségrégations et des structures de grains. Les coupes transverses (figure 2.20.a) sont effectuées dans les zones stationnaires et les coupes longitudinales (figure 2.20.b) dans les zones transitoires de la solidification.

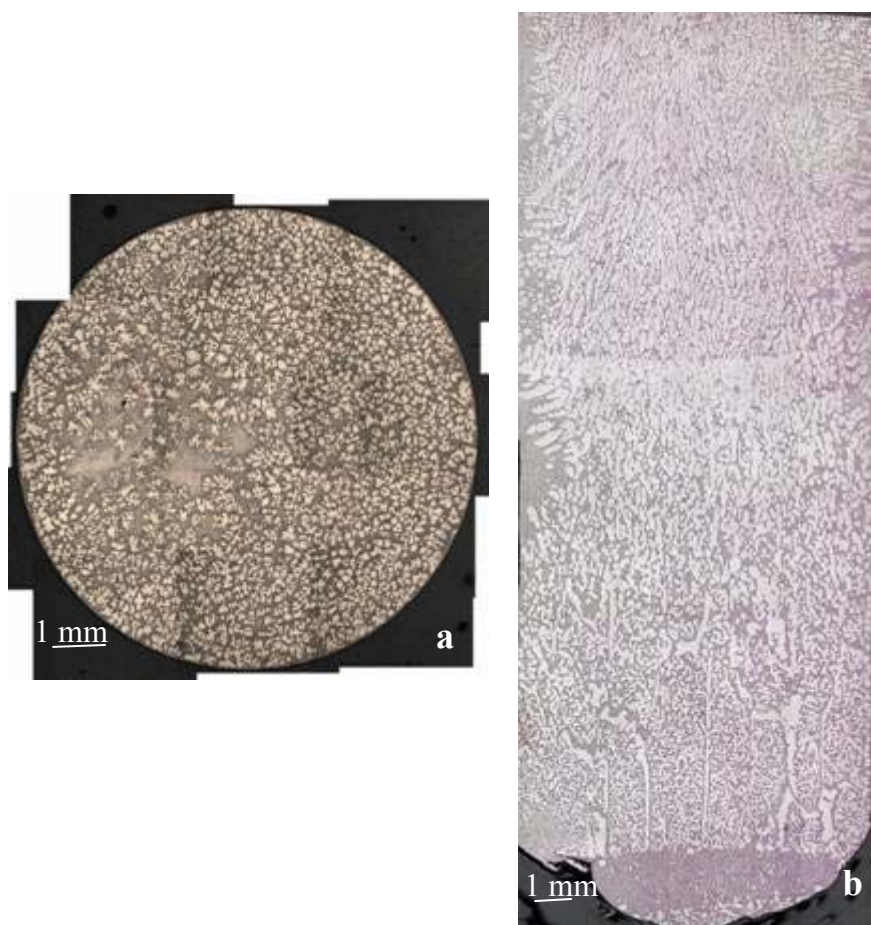


**Figure 2.19** : Plan de découpe des échantillons.

### 3.4.3 Observations métallographiques

Après découpe, les échantillons sont enrobés de la résine. Afin de caractériser les microstructures, nous effectuons un polissage, d'abord à l'aide d'une polisseuse automatique (PRESI Mecapol P 230) en utilisant des papiers en carbure de silicium (SiC), puis à l'aide de poudre d'alumine. Le polissage mécanique permet de mettre en évidence les microstructures et, les macroségrégations par la mise en évidence de zones eutectiques (figure 2.20 a et b).

Après polissage, les échantillons sont observés au microscope optique. L'échantillon est photographié à l'aide d'une camera et un montage photographique (figure 2.20) est alors effectué à l'aide du logiciel commercial Photoshop 6.0.



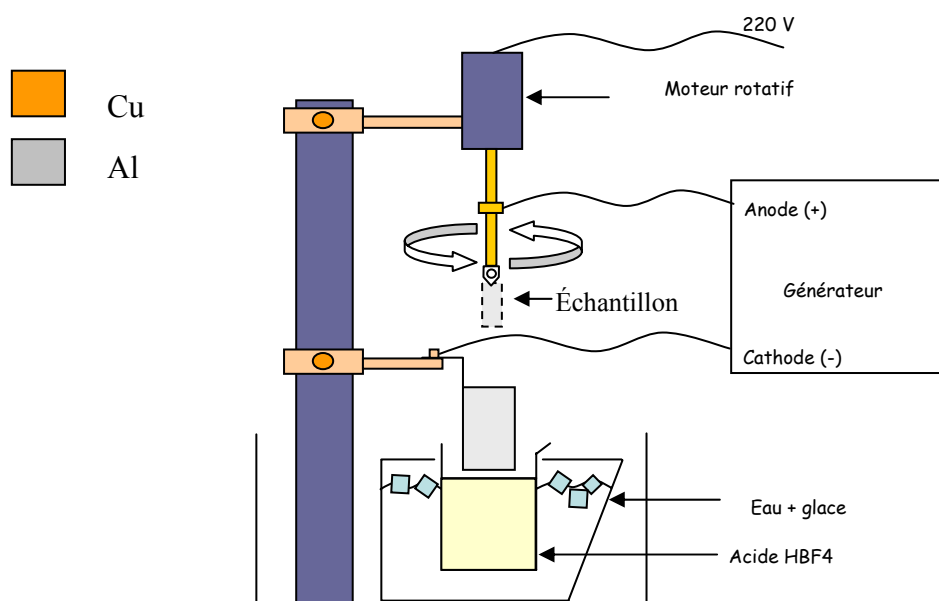
**Figure 2.20** : a) Coupe transverse, Al-3,5%Ni affiné,  $V=10\mu\text{m.s}^{-1}$ ,  $G=30\text{ K.cm}^{-1}$ ,  $B=0\text{ mT}$   
b) Coupe longitudinale, Al-3,5%Ni non affiné,  $V=10\mu\text{m.s}^{-1}$ ,  $G=20\text{ K.cm}^{-1}$ ,  $B=45\text{ mT}$ .

### 3.4.4 Anodisation

Cette opération a pour but de révéler les structures de grains et leur orientation les uns par rapport aux autres. Son principe (figure 2.21) est le dépôt, sur la surface de l'échantillon, d'une couche d'oxyde ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) dont l'épaisseur varie en fonction de l'orientation



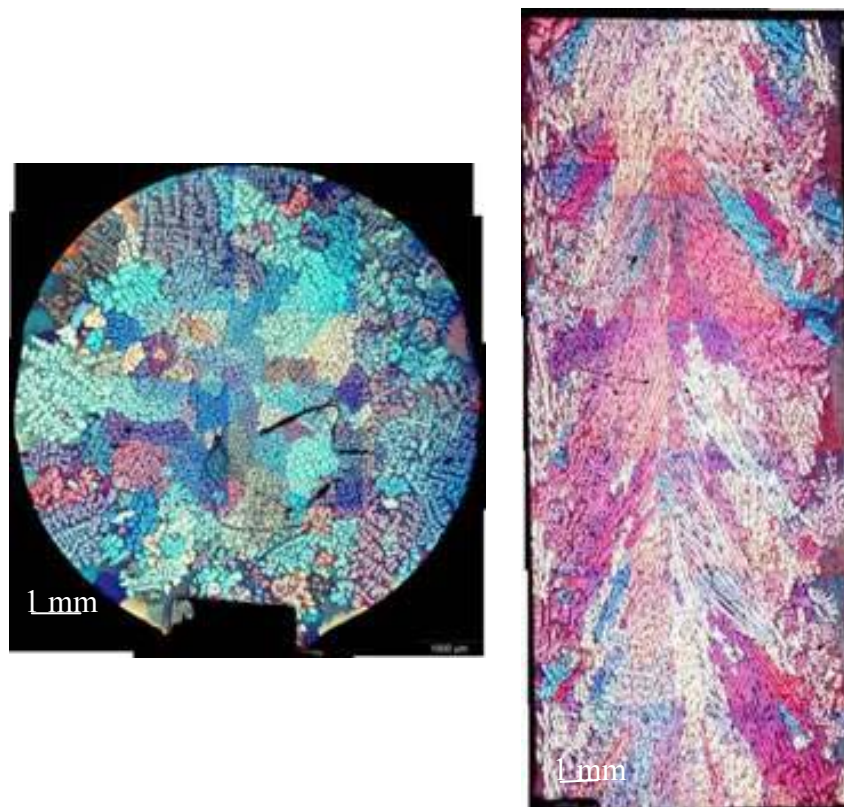
cristallographique du grain sous-jacent. Le réactif pour cette opération est élaboré à partir de 97,5 % d'eau et 2,5 % d'acide tétrafluorobique  $\text{HBF}_4$  à 35%. Cette attaque est une attaque électrochimique dont la cathode est en aluminium et dont l'anode est la face de l'échantillon sur laquelle on veut faire le dépôt. Une tension est appliquée pendant environ 30 secondes, le dépôt doit être fait en une seule fois pour que la couche soit bien homogène. Le réactif doit être refroidi en permanence ( $10^\circ\text{C}$  maximum) pour éviter une attaque trop prononcée de l'échantillon qui engendre des piqûres c'est à dire des trous sur toute la surface de l'échantillon.



**Figure 2.21:** Schéma de principe de l'anodisation.

L'échantillon est observé au microscope optique équipé de deux filtres polariseurs et d'un analyseur en position croisée afin d'avoir un effet « Nomarski ». Chaque grain a une couleur spécifique liée à sa direction cristallographique (figure 2.22).





**Figure 2.22** : Al-Ni 3,5% non affiné,  $V=10\mu\text{m.s}^{-1}$ ,  $G= 24 \text{ K.cm}^{-1}$ ,  $B= 30 \text{ mT}$ .

### 3.4.5 Analyse d'images

Une fois la procédure de saisie terminée, les images sont stockées pour être traitées avec le logiciel de traitement des images VISILOG 6 (NOESIS).

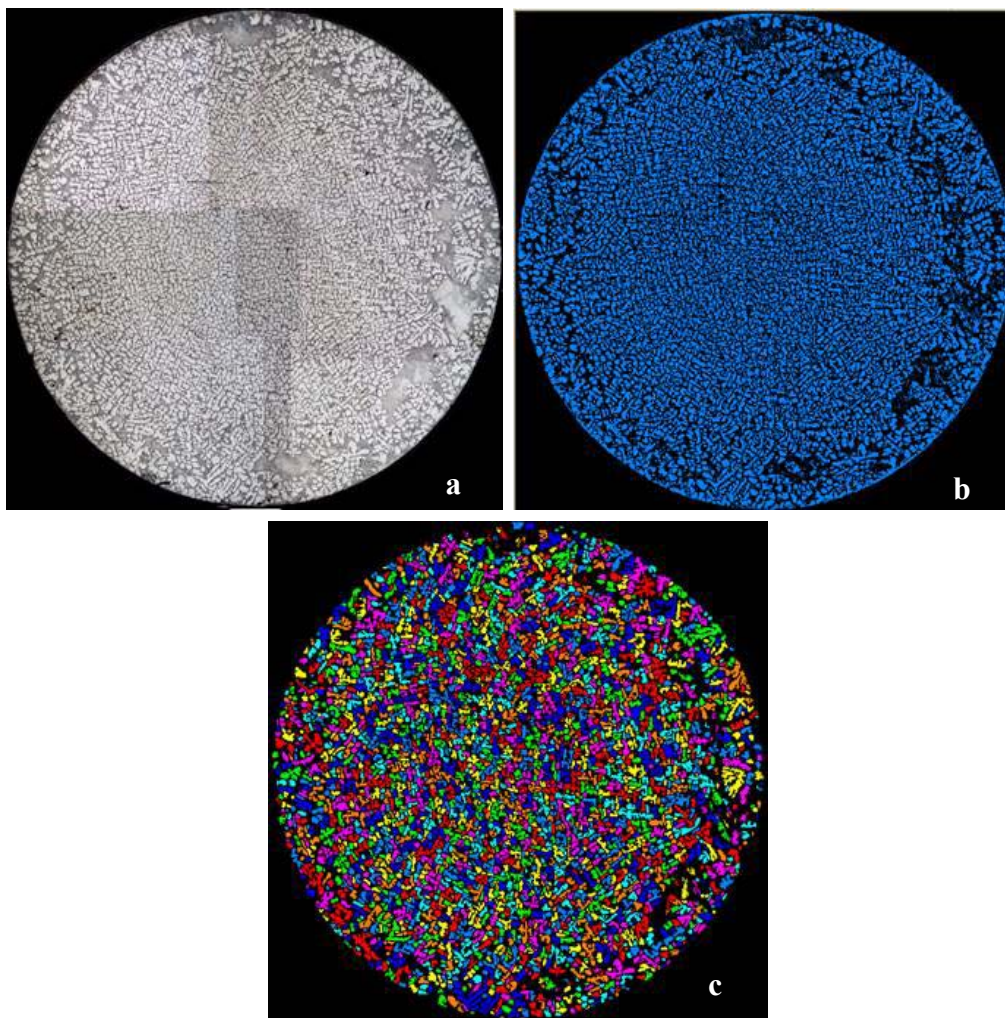
#### *a) Calcul de la fraction eutectique*

Le seuillage, qui permet de séparer les deux phases du matériau sur une image en niveau de gris, est une étape préliminaire indispensable à l'analyse d'images. Dans notre cas, la microstructure de l'alliage est composée de deux phases : le solide primaire, organisé en dendrites, composé d'aluminium quasiment pur, et l'eutectique, lui-même composé de deux phases, l'une pauvre en nickel, l'autre riche en nickel. Au microscope optique, les phases pauvres en nickel (solide primaire, phase aluminium de l'eutectique) apparaissent plus claires que les phases riches en nickel. Un bon seuillage nécessite un bon contraste de l'image en niveau de gris et une répartition homogène de l'intensité lumineuse moyenne sur la surface de l'image. Le principe du seuillage de l'image, ou binarisation est le suivant : tout pixel de niveau de gris inférieur au seuil sera mis à la valeur 1 (blanc pour le logiciel), et les autres à la valeur 0 (noir) Après la binarisation (figure 2.23 b), nous identifions toute la phase

d'aluminium (solide primaire). Chaque cellule est différenciée par une couleur différente (figure 2.23 c). Les couleurs dans ce cas ne sont pas représentatives de l'orientation des grains mais sont introduites par le logiciel afin d'identifier chaque cellule traitée. La somme de toutes les cellules traitées nous donne la surface occupée par la phase primaire riche en aluminium. La mesure de la surface eutectique peut alors être déduite en appliquant l'équation 2.3

$$S_T = S_E + S_{Al} , \quad (2.3)$$

où  $S_T$  représente la surface totale de la section ,  $S_E$  la surface occupé par l'eutectique et  $S_{Al}$  la surface mesurée (solide primaire). L'incertitude obtenue en utilisant cette méthode est d'environ de 10%.



**Figure 2.23** : Différentes étapes pour la mesure de la fraction eutectique a) Montage des photos prises au microscope dans le cas d'un alliage affiné solidifié avec  $V = 10 \mu\text{m/s}$  et  $B = 350 \text{ mT}$  b) Binarisation (après traitement) c) Indexation des cellules par le logiciel et calcul.

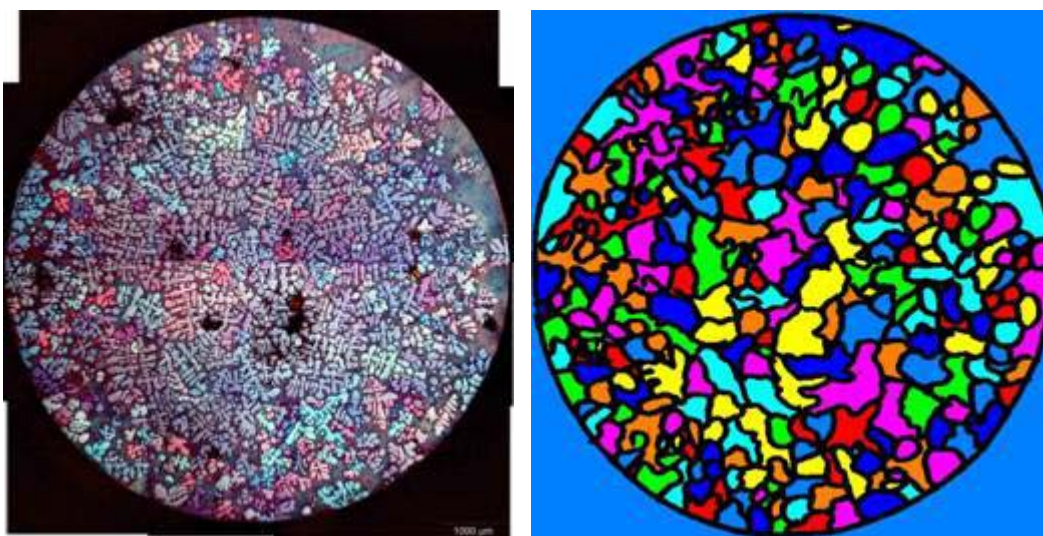
### *b) Calcul de la taille des grains*

La première étape consiste à identifier tous les grains. Pour cela on se sert du fait que les joints de grains et l'eutectique sont très sombres par rapport à la phase d'aluminium. Ensuite, on réalise un seuillage en s'appuyant sur la photographie couleur de l'échantillon (anodisation figure 2.22) on identifie les grains et on ferme le réseau des joints de grains. Pour cela, on utilise divers outils morphologiques d'analyse d'images comme la fermeture et l'ouverture directionnelle, l'érosion, la dilatation, le travail sur l'image complémentaire et en dernier recours, les corrections manuelles sur la photographie couleur de l'échantillon.

Enfin, une fois que l'image couleur identifiant chaque grain comme une entité indépendante est satisfaisante (figure 2.24), on procède à la mesure de l'aire  $A$  occupée par chaque grain. A partir de cette aire, on détermine le diamètre  $D_{eq}$  d'un disque dont la surface est équivalente à l'aire mesurée en utilisant la relation :

$$A = \pi \left( \frac{D_{eq}}{2} \right)^2. \quad (2.4)$$

A partir de ce diamètre, nous avons la possibilité d'obtenir un ordre de grandeur pour la mesure de la taille de grain qui est en première approximation équivalent à l'espacement primaire dans le cas des grains colonnaires. Chaque mesure est introduite dans une liste où un traitement statistique est opéré afin d'en déduire la moyenne ainsi que l'écart type. On prendra pour chaque figure traitée la valeur moyenne du diamètre mesuré avec comme incertitude la valeur de l'écart type.



**Figure 2.24** : Mesure de la taille des grains.



## Références du chapitre II

1. T. Alboussière, *Magnétohydrodynamique et ségrégation solutale en croissance Bridgman horizontale*, Thèse de doctorat, INPG Grenoble (1994)
2. G. Darmon & R.Ernst, *Inverse middle frequency electromagnetic stirring using the single phase asynchronous motor principle applied on the cold crucible continuous casting installations*, Technical report
3. M. Medina, Y. Du Terrail, F. Durand, and Y. Fautrelle, *Channel segregation during solidification and the effects of an AC Travelling Magnetic Field*, Metallurgical and Materials Transactions B **35B**, (2004) 1-12
4. A. Ciobanas, F. Baltaretu and Y. Fautrelle, *Ensemble averaged two-phase eulerian model for columnar/equiaxed solidification of a binary alloy*, Proc. of the SG04 conference, Miskolc, September 4-9 (2004)
5. M.D. Dupouy and D. Camel, *Comparative Study of the Columnar-Equiaxed Transition in Microgravity and on Ground during Directional Solidification of a Refined Al-3.5 wt% Ni alloy*, J. Phys. IV France 11, (2001)
6. H. N'Guen Thi, B. H. Zhou, G. Reinhart and B. Billia, *Influence of forced convection on columnar microstructure during directional solidification of Al-Ni alloys*, Proc. of the SG04 conference, Miskolc, September 4-9 (2004)
7. A.L. Greer, A.M. Bunn, A. Tronche, P.V. Evans and D.J. Bristow, *Modelling of inoculation of metallic melts: application to grain refinement of aluminium by Al-Ti-B*, Acta Mater. 48, (2000) 2823
8. J.D. Hunt, *Steady state columnar and equiaxed growth of dendrites and eutectic*, Materials Science and Engineering, **65** (1984) 75-83
9. .L. Sylla, *Solidification dirigée en présence de convection naturelle ou forcée: Etude des microstructures dendritiques*, DEA INPG (2003)
10. W. Pfann, *Temperature Gradient Zone Melting*, Trans. AIME, 203 (1955) 961
11. H. N'Guyen Thi, B. Drevet, J.M. Debierre, D. Camel, Y. Dabo and B. Billia, *Preparation of the initial solid liquid interface and melt in directional solidification*, Journal of Crystal Growth **253**, (2003) 539-548

# Chapitre III : Macroségrégations

## 1 Introduction

Malgré le choix d'un alliage thermiquement et solutalement stable, tel que Al-Ni 3.5pds%, des boucles de convection prennent naissance au niveau de la zone pâteuse [1]. Elles sont induites par les différences de conductivité thermique entre le solide, le liquide et le creuset. Ce mouvement hydrodynamique demeure relativement local (dans une zone tampon proche de la zone pâteuse) et découplé du bain liquide. Les boucles de convection transportent le soluté du centre vers la périphérie où il s'accumule donnant ainsi naissance à une ségrégation radiale, qui conduit à la présence de zones plus ou moins riches en soluté visibles, lors de l'analyse *post mortem*. Cette ségrégation n'est qu'en partie inéluctable : elle dépend pour une grande partie de l'état convectif du bain [1, 2]. La maîtrise des écoulements dans le bain liquide peut donc être un moyen efficace pour la contrôler.

Nous nous sommes intéressés dans ce chapitre, aux résultats obtenus sur le contrôle des macroségrégations lors de la solidification de l'alliage Al-Ni 3.5pds% aussi bien non affiné qu'affiné (en présence de particules inoculantes).

## 2 Influence de la convection naturelle et cas de référence

Sur Terre, lors de la solidification dirigée de l'alliage Al-Ni 3.5pds%, il apparaît une convection naturelle à l'intérieur du bain liquide qui dépend également de la vitesse de tirage [3, 4]. Afin d'étudier uniquement l'effet de la convection naturelle ou forcée à l'intérieur du liquide lors de la solidification dirigée, nous proposons de réaliser des expériences de solidification dirigée avec la même vitesse de tirage  $10 \mu\text{m.s}^{-1}$  comme précisé au chapitre II. Les paramètres des deux expériences présentés dans ce paragraphe sont décrits dans le Tableau 3.1.

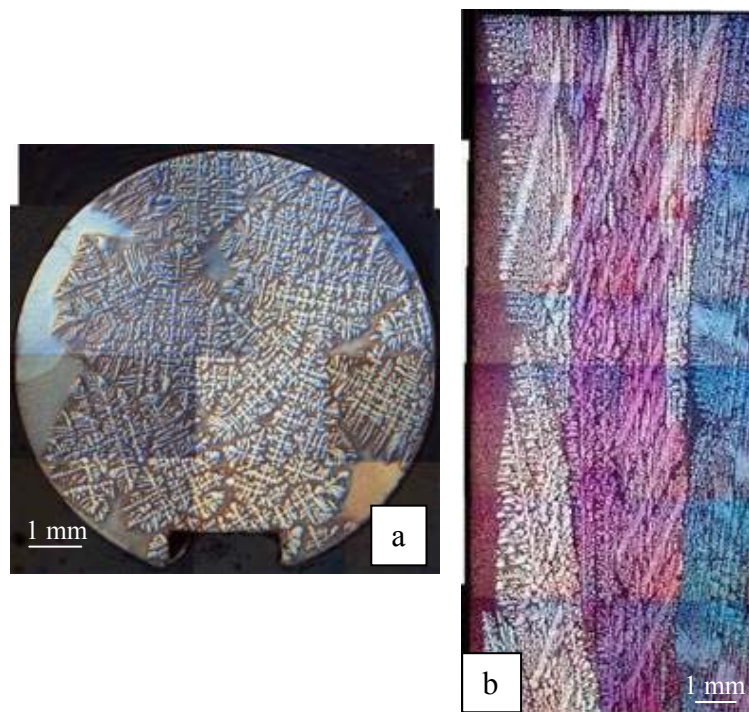
Type d'alliage	Vitesse de solidification en $\mu\text{m.s}^{-1}$	Gradient thermique axial en $\text{K.cm}^{-1}$	Intensité champ magnétique en mT
Non affiné	10	26	0
affiné	10	30	0

**Tableau 3.1:** Paramètres des expériences de référence.

## 2.1 Al-3.5%Ni non affiné

Plusieurs études réalisées sur cet alliage [2, 3, 4], font apparaître un effet significatif de la convection naturelle sur la solidification dirigée. L'importance de la convection a été confirmée par des expériences en microgravité (régime diffusif) [1].

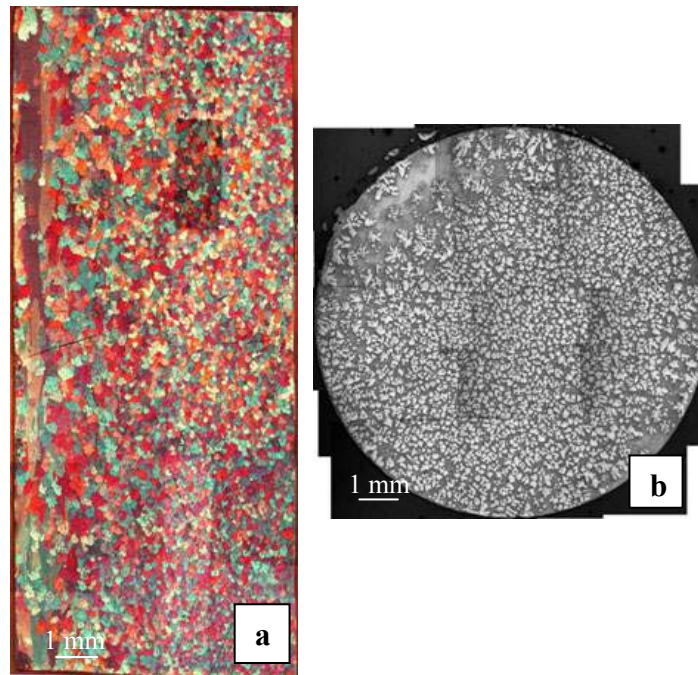
Dans nos expériences, (figure 3.1), nous constatons la présence d'un liseré eutectique sur toute la longueur solidifiée, c'est le signe d'une déformation du front de solidification. Cette déformation est initiée par la présence d'un gradient de température radial au niveau de la zone pâteuse qui induit une ségrégation radiale. Celle-ci est due tout d'abord à la différence de conductivité thermique entre le solide et le liquide, puis elle est accentuée par un effet purement solutal [2]. Le raisonnement heuristique développé par Burden *et al.* [5] est applicable : si, le front dendritique moyen n'est pas parfaitement plan, le liquide plus dense (riche en nickel) au voisinage des pointes de dendrites a tendance à s'écouler vers le bas et l'enrichissement ainsi produit accentue la déformation de l'interface. Il s'établit une boucle de convection, avec un liquide descendant plus riche en nickel le long du front et un liquide plus léger qui remonte à l'extérieur (figure 3.3 a). Ces boucles de convection restent très locales dans une zone tampon proche de la zone pâteuse évitant un mélange réel avec le bain liquide [2].



**Figure 3.1:** Alliage non affiné :  $V= 10 \mu\text{m.s}^{-1}$  ;  $B= 0\text{mT}$  ;  $G= 26 \text{K.cm}^{-1}$  a) Coupe transverse métallographique révélant la microstructure après 25 mm de solidification b) Coupe longitudinale anodisée révélant la structure de grains entre 25 et 45 mm de solidification.

## 2.2 Al-3.5%Ni affiné

Après avoir montré l'effet de la convection naturelle lors de la solidification dirigée d'une structure colonnaire, nous nous sommes intéressés à l'effet de la convection naturelle sur une structure équiaxe. Nous avons choisi le même alliage avec, en plus, un ajout de particules affinant permettant la nucléation des grains équiaxes dans le bain liquide pour pouvoir étudier le régime équiaxe. Hunt [6] a montré dans son modèle que la croissance d'une structure équiaxe était favorisée sous certaines conditions de solidification (gradient thermique et vitesse de tirage) en présence de particules inoculantes. Comme indiqué dans le chapitre II, des expériences préliminaires avaient permis de montrer que dans nos conditions de gradient de température et de vitesse, le régime de croissance est équiaxe [7]. L'effet de la convection sur la croissance équiaxe est développé dans le chapitre IV, ici nous allons nous intéresser uniquement à l'effet de la convection sur les macroségrégations induites lors de la solidification d'une structure équiaxe. Sur la figure 3.2, nous constatons la présence d'un liseré eutectique. Plusieurs expériences réalisées dans les mêmes conditions montrent que cette zone eutectique affecte de façon reproductible l'ensemble de la longueur solidifiée. L'origine de cette zone eutectique est la même que dans le cas de l'alliage non affiné. On constate cependant que le liseré eutectique est moins important dans le cas de la croissance équiaxe. Les boucles de convection induites par la déformation macroscopique du front de solidification restent locales dans une zone proche de la zone pâteuse.



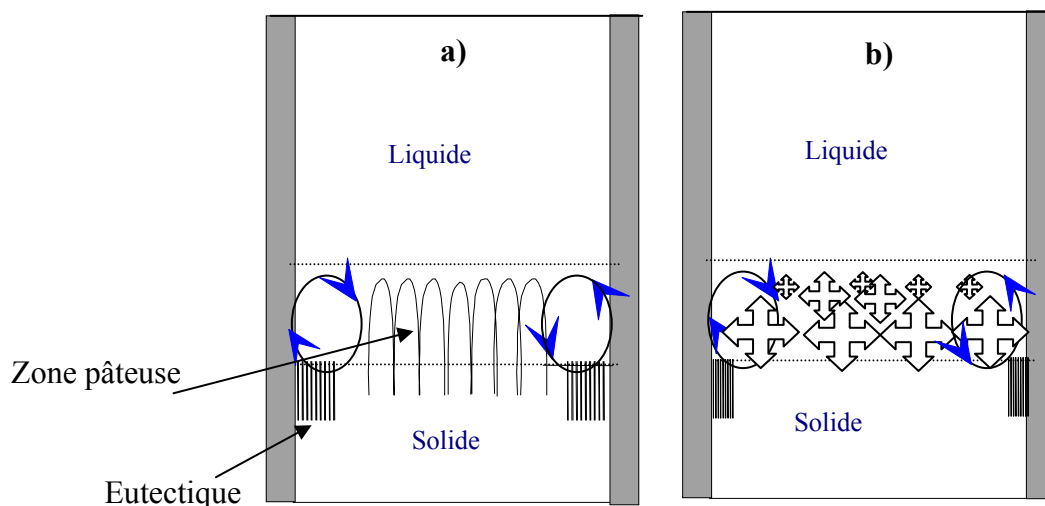
**Figure 3.2** : Alliage affiné :  $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$  ;  $B = 0\text{mT}$  ;  $G = 30 \text{K.cm}^{-1}$  a) Coupe longitudinale entre 25 et 45 mm de solidification b) Coupe transverse après 25 mm de solidification.

### Effet de la convection naturelle sur les deux types de structures

L'effet de la convection naturelle dépend du type de microstructure. En effet, pour un alliage non affiné, l'écoulement reste confiné entre les dendrites colonnaires et le bord. L'hypothèse d'un tel écoulement est justifiée par le fait que les dendrites colonnaires sont attachées au tout solide. Une boucle de recirculation apparaît alors entre les dendrites et le bord de l'échantillon (figure 3.3.a), et amplifie le phénomène de rejet du soluté à la périphérie en augmentant la taille du liseré eutectique.

Dans le cas d'une croissance équiaxe, les grains sont transportés par l'écoulement après leur nucléation puisqu'ils n'ont pas de liaison avec tout le solide. Le fluide transporte les grains qui ont nucléé au voisinage de la zone où l'écoulement est le plus actif. Ces grains continuent de croître jusqu'à une taille limite où le poids devient supérieur à la force induite par l'écoulement (flottabilité), ils retombent alors par sédimentation faisant un obstacle pour l'écoulement (figure 3.3.b) et réduisant ainsi la taille du liseré eutectique (dépourvu de dendrites).

Le raisonnement précédent est confirmé par les expériences. Dans le cas de l'alliage affiné (figure 3.2), on constate la présence de certains grains à l'intérieur du liseré eutectique transportés par l'écoulement alors que dans le cas de l'alliage non affiné (figure 3.1), la zone du liseré eutectique est dépourvue de dendrites. De plus, dans le cas de l'alliage affiné, le liseré eutectique est de plus petite taille que dans le cas non affiné ce qui va dans le sens d'une moindre amplification du phénomène dans le cas affiné.



**Figure 3.3 :** Schéma de l'effet de la convection sur les deux types de structure de croissance  
a) Structure colonnaire b) Structure équiaxe.



### 3 Convection forcée dans le même sens que la convection naturelle par champ magnétique glissant

Afin d'étudier l'influence des écoulements dans le bain liquide sur la solidification et éventuellement de contrôler certains phénomènes et plus précisément de la macroségrégation dans ce chapitre, nous nous proposons de piloter la convection à l'aide d'un champ magnétique glissant. Dans un premier temps, le sens du champ magnétique glissant est choisi tel que la force de Laplace crée un écoulement qui va dans le même sens que la convection naturelle. Les paramètres des expériences décrites dans ce paragraphe sont récapitulés dans le tableau 3.2.

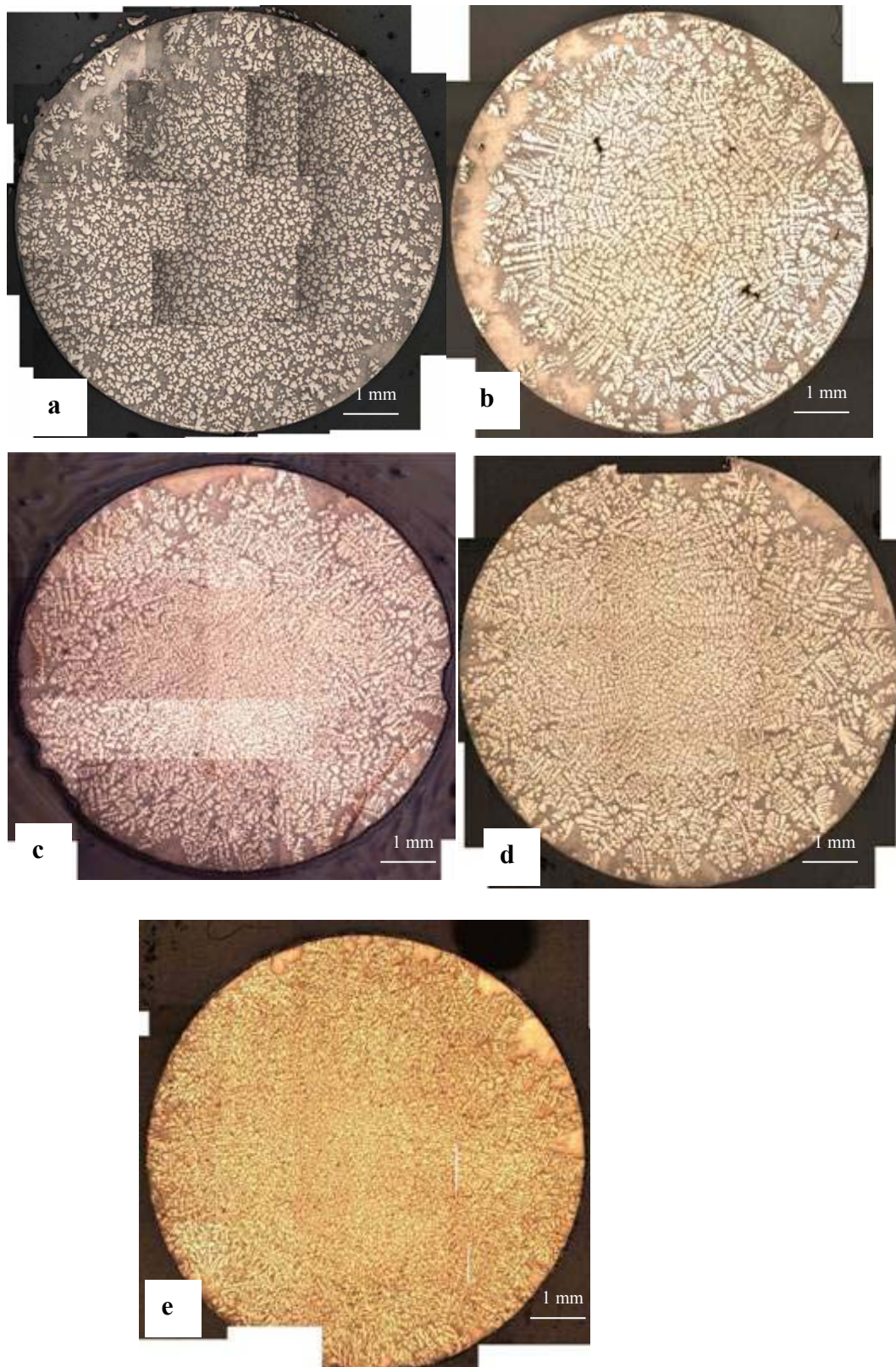
Type d'alliage	Vitesse de solidification en $\mu\text{m.s}^{-1}$	Gradient de température axial en $\text{K.cm}^{-1}$	Intensité champ magnétique en mT
Affiné	10	28	10
Affiné	10	24	30
Affiné	10	20	45
Affiné	10	8	350

**Tableau 3.2:** Paramètres des expériences réalisées sous champ magnétique glissant avec une force qui produit un écoulement qui va dans le même sens que la convection naturelle.

#### 3.1 Macroségrégation radiale

##### 3.1.1 Résultats expérimentaux

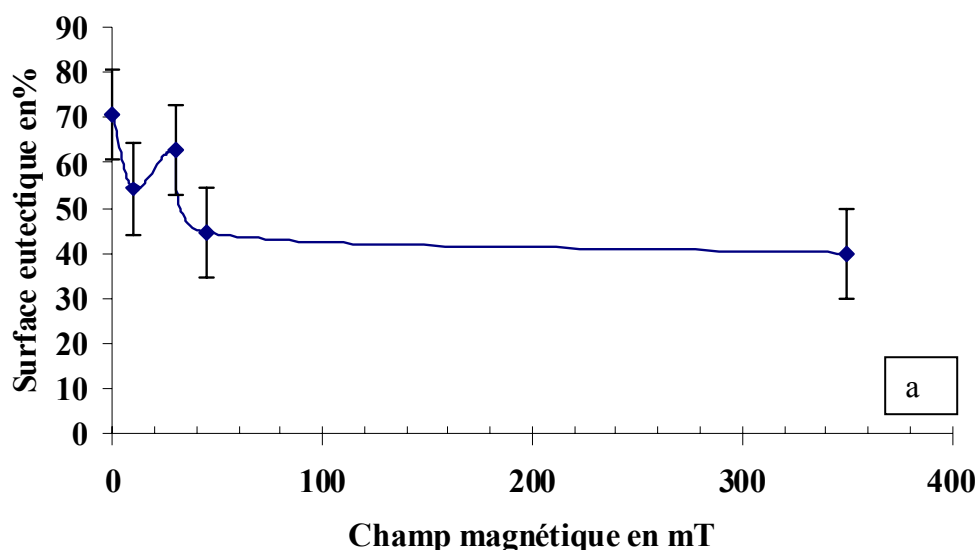
Sur la figure 3.4, nous présentons quelques coupes transverses d'alliages affinés en présence de champ magnétique. Tout d'abord, une répartition plus symétrique du liseré eutectique apparaît en présence de l'écoulement forcé. La symétrie de l'écoulement est liée à la géométrie de l'inducteur (moteur tubulaire), mais reste cependant imparfaite (car le liseré est discontinu) contrairement au cas d'utilisation d'un champ tournant où la symétrie du mouvement poloïdal secondaire est assurée par l'effet gyroscopique du mouvement toroïdal primaire.

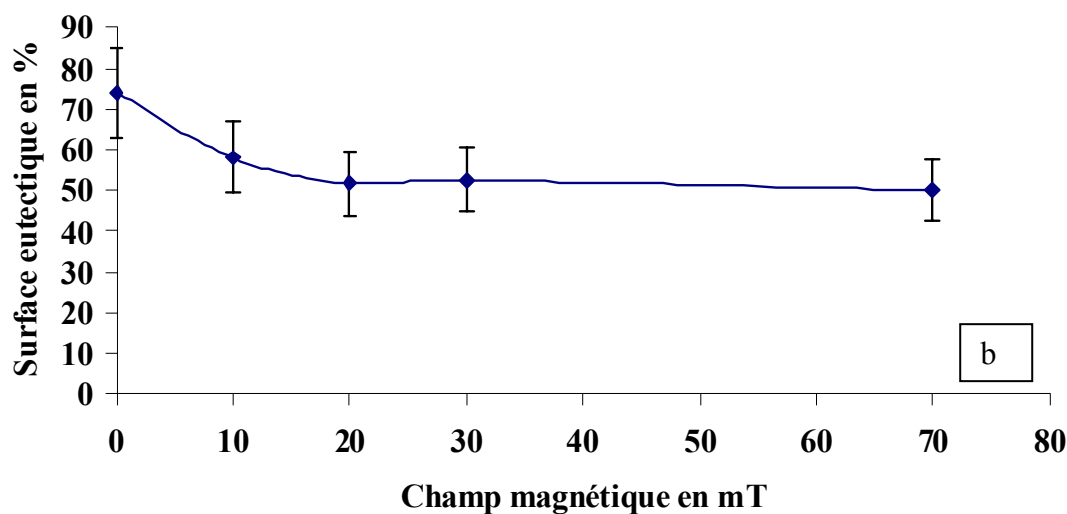


**Figure 3.4 :** Coupes transverses après 20 mm de solidification d'un alliage affiné en présence de convection forcée dans le même sens que la convection naturelle a)  $B = 0 \text{ mT}; V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}; G_L = 30 \text{ K.cm}^{-1}$  b)  $B = 10 \text{ mT}; V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}; G_L = 28 \text{ K.cm}^{-1}$  c)  $B = 30 \text{ mT}; V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}; G_L = 24 \text{ K.cm}^{-1}$  d)  $B = 45 \text{ mT}; V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}; G_L = 20 \text{ K.cm}^{-1}$ . e)  $B = 350 \text{ mT}; V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}; G_L = 8 \text{ K.cm}^{-1}$ .

Nous constatons de plus une diminution de la taille du liseré eutectique lorsque l'on augmente l'intensité du brassage. Afin de chiffrer cette observation, nous avons effectué des mesures de la variation de la fraction eutectique en fonction de l'intensité du brassage électromagnétique (figure 3.5) sur les deux types de structures (colonnaires et équiaxes). Les mesures de la fraction eutectique sont effectuées à partir du traitement des images de coupes transverses, toutes choisies après deux centimètres de solidification afin de s'assurer de la présence d'un régime quasi-stationnaire. Etant donné que l'on pratique un traitement d'images, il existe une perte d'information lors de la numérisation des photos (chapitre II). Cette incertitude est représentée par les barres d'erreur sur les courbes expérimentales. L'analyse confirme la diminution du liseré lorsque le brassage électromagnétique augmente. Le décalage du point mesuré à 30 mT dans le cas d'un alliage affiné (figure 3.5a), est dû à un changement de structure. En effet, les mesures sont réalisées pour un alliage Al-Ni 3.5% affiné, et dans ce cas, la structure reste équiaxe pour un brassage inférieur à 30 mT, mais devient colonnaire au-delà de cette valeur.

Dans le cas des alliages non affinés (figure 3.5b), nous constatons aussi une diminution de la fraction eutectique lorsque l'on augmente l'intensité du brassage électromagnétique. Nous reviendrons sur les modifications de microstructure et de structure de grains au chapitre IV.



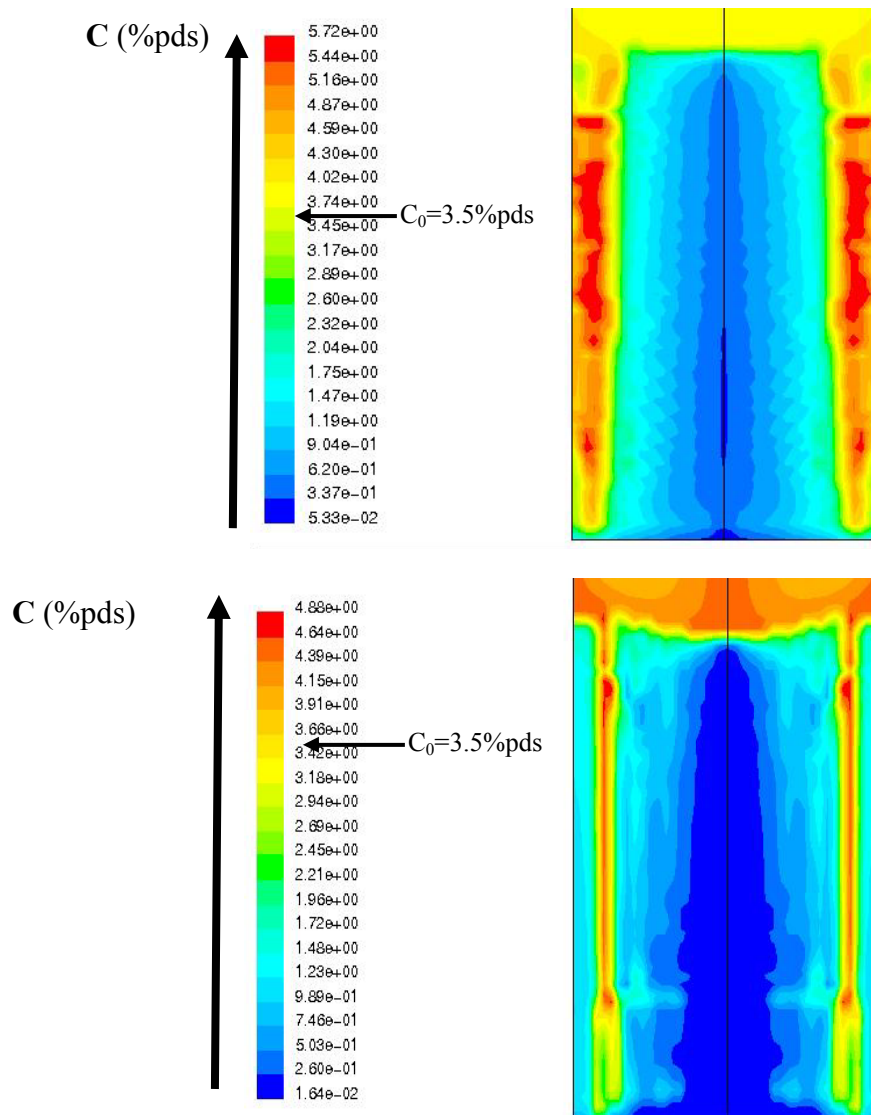


**Figure 3.5:** Fraction eutectique en fonction du brassage électromagnétique a) Alliage affiné b) Alliage non affiné.

### 3.1.2 Simulations numériques

La diminution du liseré eutectique va dans le sens d'une diminution de la quantité de soluté déposée par sédimentation lorsque le brassage augmente. Pour confirmer cette interprétation, nous avons également utilisé un code numérique développé au sein du laboratoire par Ciobanas *et al* [11]. Ce code permet de coupler les équations de l'hydrodynamique à celles de la solidification, le calcul est effectué à l'aide d'une géométrie 2D axisymétrique. Le traitement de la zone pâteuse est pris en compte lors de la résolution des équations.

Sur la figure 3.6, nous avons représenté la concentration moyenne (sur une maille) au cours de la solidification dirigée de l'alliage Al-Ni 3,5%pds. Il apparaît en périphérie un liseré, dont la composition est proche de la composition eutectique (5,7%) ainsi qu'un appauvrissement en soluté au centre dû au balayage de la couche solutale par le brassage électromagnétique. Lors de la simulation numérique en présence d'un champ magnétique glissant de 10 mT (figure 3.6b), la validité du code numérique atteint ses limites. Il apparaît alors un décrochement du liseré à la paroi, la présence de boucles de recirculation parasites entre le liseré et le bord du creuset justifie ce décalage par rapport aux expériences (figure 3.4b). Cependant, la taille du liseré eutectique diminue lorsque l'intensité du brassage augmente. Il y a donc un accord qualitatif avec nos expériences.



**Figure 3.6:** Etude numérique de la concentration moyenne lors de la solidification dirigée de l'alliage Al-3,5%Ni non affiné en présence d'un champ magnétique glissant a)  $B = 5 \text{ mT}$  b)  $B = 10 \text{ mT}$ ,  $G = 30 \text{ K/cm}$  et  $V = 10 \text{ } \mu\text{m/s}$ .

### 3.2 Macroségrégation longitudinale

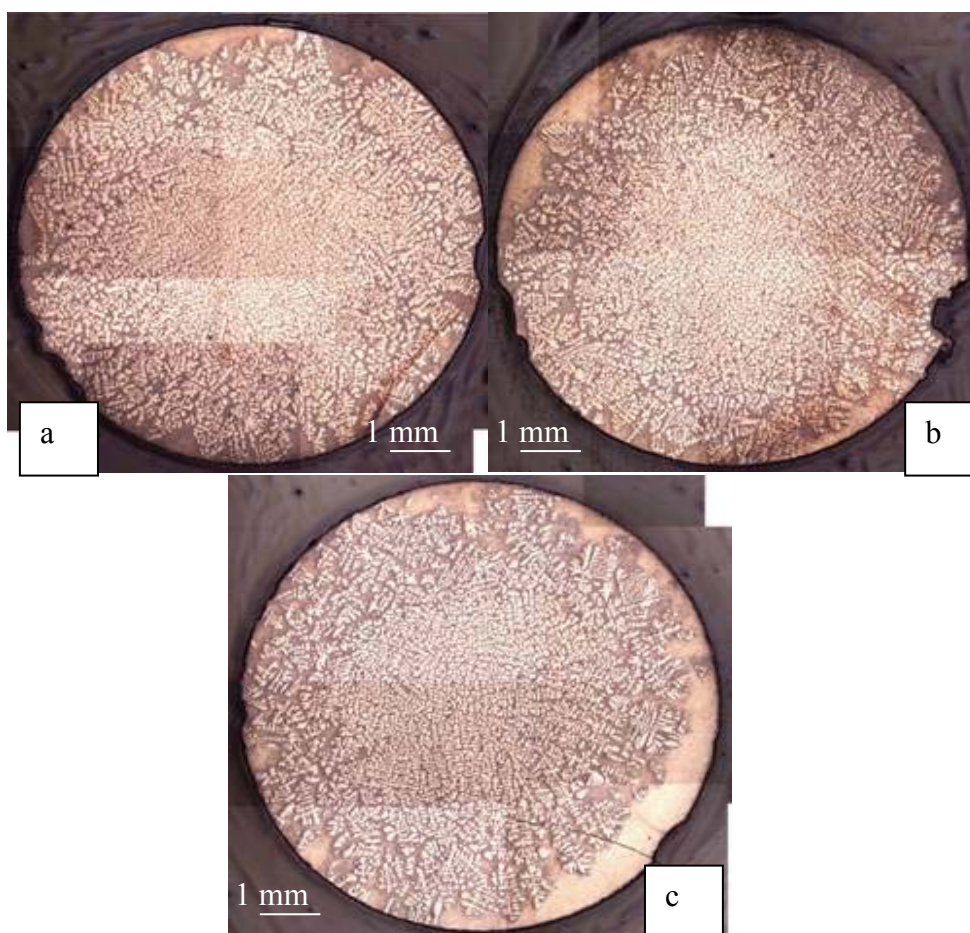
Puisque que le brassage est présent durant toute la solidification de l'échantillon, le soluté rejeté au cours de la solidification est en perpétuel mouvement dans le bain liquide empêchant sa sédimentation. Après avoir constaté une diminution de la macroségrégation radiale au travers de plusieurs échantillons élaborés sous différentes intensités de champ magnétique, nous étudions dans ce paragraphe, l'effet du brassage au cours de l'élaboration d'un échantillon sur sa macroségrégation longitudinale.



### 3.2.1 Résultats expérimentaux

Afin de mettre en évidence qualitativement la présence d'une macroségrégation longitudinale, nous nous intéressons à la taille du liseré eutectique au cours de la solidification d'un échantillon.

Sur la figure 3.7, trois coupes transverses sont présentes, les coupes sont effectuées après une longueur de solidification de 2, 4, et 6 cm. On observe une augmentation de la taille du liseré eutectique qui montre la présence d'une quantité du soluté de plus en plus grande à l'intérieur du bain liquide. Une mesure de la surface occupée par le liseré est effectuée pour chaque coupe (Tableau 3.3). Il apparaît clairement une augmentation de la surface occupée par le liseré lorsque la longueur solidifiée augmente, ceci confirme la présence d'une macroségrégation longitudinale.



**Figure 3.7 :** Etude du liseré eutectique au cours de la solidification d'un alliage affiné sous une convection forcée de 30 mT,  $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$  a) 2 cm de solidification ; b) 4 cm ; c) 6 cm.

Longueur solidifiée en cm	2	4	6
Surface mesurée en %	57,62	62,51	69,54

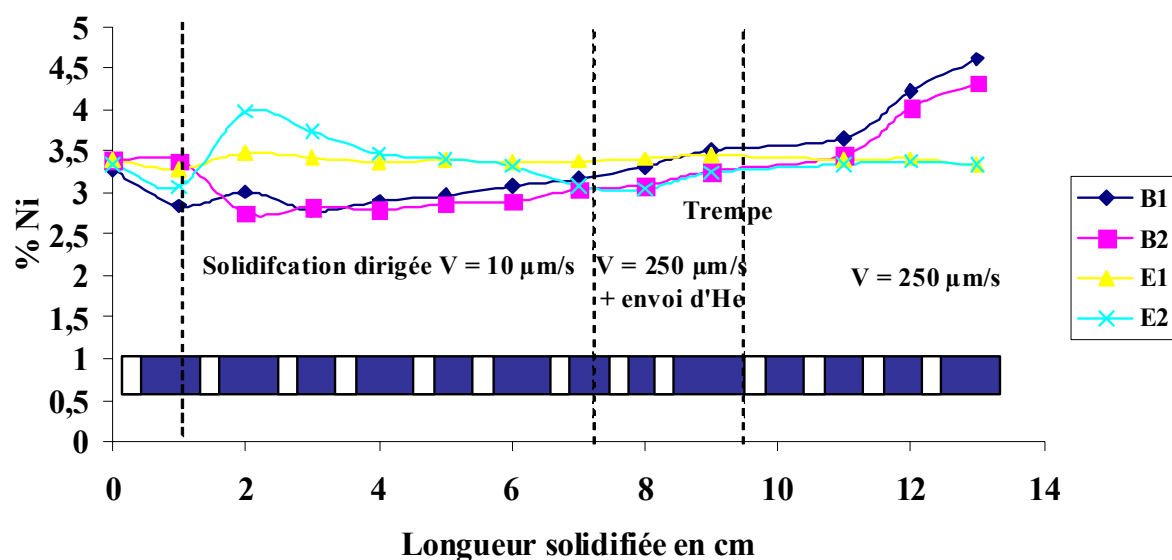
**Tableau 3.3 :** Variation du liseré eutectique en fonction de la longueur solidifiée.

Cette étude semi-quantitative est complétée par une analyse réalisée par le laboratoire central d'analyse du CNRS, à l'aide de la technique de l'I.C.P optique (*Inductive Coupled Plasma*). Le principe de l'I.C.P optique consiste à analyser les photons émis par les éléments excités par ionisation au moyen d'une torche à plasma. Le spectre émis par chaque élément excité est caractéristique de cet élément et l'intensité des raies est proportionnelle à sa concentration. Les échantillons sont découpés en plusieurs coupes transverses (tout les 5 mm). L'analyse est destructive, elle permet de connaître la quantité exacte de chaque composant de l'alliage (Ni et Al dans notre cas). Les résultats de l'analyse sont donnés avec une précision de 2% (donnée CNRS). Quatre échantillons d'une longueur de 140 mm ont été analysés. Les conditions d'élaborations sont reportées dans le Tableau 3.4.

Nom	Gradient de température en $K.cm^{-1}$	Vitesse de tirage en $\mu m.s^{-1}$	Nature de l'échantillon	Intensité du brassage en mT
E1	30	10	Affiné	0
E2	26	10	Non affiné	0
B1	24	10	Affiné	30
B2	22	10	Non affiné	30

**Tableau 3.4** : Paramètres des échantillons envoyés à l'I.C.P.

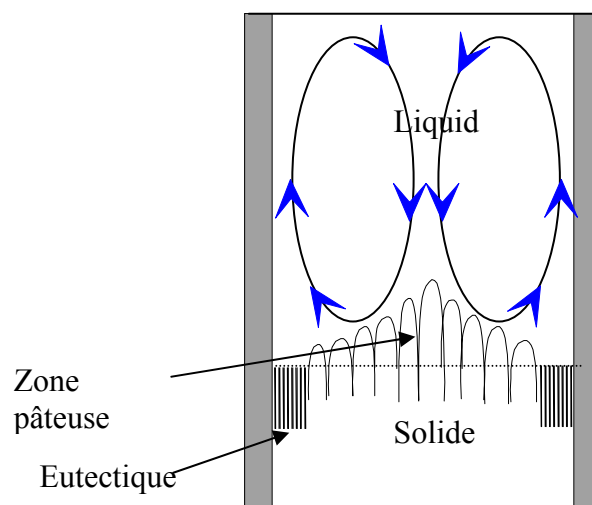
Sur la figure 3.8, nous avons représenté les résultats expérimentaux pour les quatre échantillons.



**Figure 3.8** : Représentation de l'analyse I.C.P optique pour les quatre échantillons. Les coupes analysées sont représentées en blanc sur le schéma de l'échantillon.

Pour l'échantillon affiné solidifié sous la convection naturelle *E1* (jaune), on constate que la quantité de Ni reste quasi-constante autour de 3,5 %. La courbe représentant le cas de l'alliage non affiné sans champ (*E2* en bleu ciel) est semblable à celle obtenue par Nguyen Thi *et al* [12]. Il apparaît un phénomène de TGZM (*Thermal Gradient Zone Melting*, cf. chapitre II) qui donne une forme particulière à la répartition du soluté dans la partie basse du barreau lors de la stabilisation thermique avant la solidification. Nguyen Thi *et al.* ont montré que la quantité de soluté (nickel) diminue lorsque le temps de stabilisation est suffisant dans la zone située en avant du front. La diminution de la concentration en soluté dans la première zone à gauche correspond à cet effet, puis la quantité de soluté augmente brusquement dans une zone proche limitrophe. Le phénomène de TGZM n'apparaît pas sur toutes les courbes car le temps de stabilisation est de l'ordre d'une heure, ce qui n'est pas suffisant pour vraiment parler de TGZM. Pour les deux courbes correspondant aux alliages affinis et non affinis solidifiés sans champ magnétique (*E1* et *E2*), on n'observe pas de macroségrégation longitudinale ce qui est attendu.

Par contre, les courbes des expériences avec un champ magnétique (*B1* en noir et *B2* en rose) montrent une légère augmentation de la quantité de soluté longitudinalement. Cette augmentation est le signe d'un rejet du soluté dans le liquide en avant du front de solidification. Il apparaît donc clairement une ségrégation longitudinale lorsque l'on introduit une convection forcée dans le même sens que la convection naturelle. Ce phénomène s'explique par le fait que l'écoulement induit par le brasseur électromagnétique n'est pas local comme dans le cas de la convection naturelle (figure 3.3 a) mais est imposé sur toute la longueur de l'échantillon (figure 3.9).

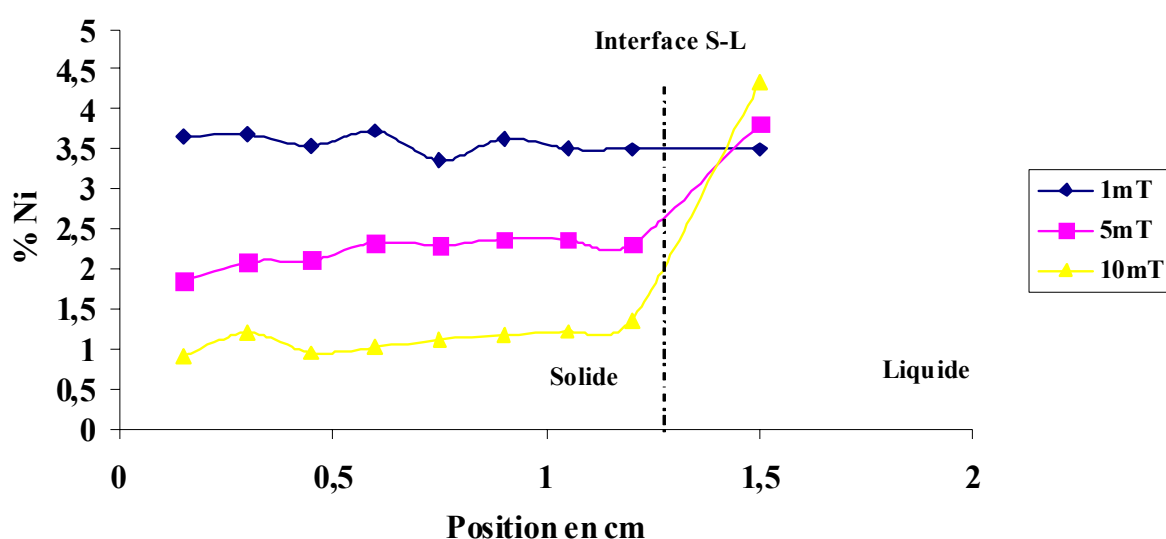


**Figure 3.9** : Boucles de convection en avant du front de solidification : Boucles symétriques induites par le champ magnétique glissant dans tout l'échantillon.



### 3.2.2 Simulations numériques

Afin de compléter ces résultats, nous avons réalisé des simulations numériques à l'aide du code décrit précédemment au paragraphe 3.1.2. En raison de la durée assez longue des calculs (10 jours de calculs pour une longueur équivalente à 2 cm), nous avons décidé de limiter nos expériences numériques à des échantillons de quelques centimètres (entre 2 et 4 cm). L'étude numérique décrite ci-dessous nous permet de mettre en évidence et de confirmer l'effet du brassage électromagnétique sur la macroségrégation longitudinale. Etant donné le niveau de turbulence, qui augmente très rapidement, le code numérique ne peut pas être utilisé pour des valeurs de champ magnétique supérieures à 10 mT. En effet, au-delà de ce seuil, l'écoulement ne peut plus être traité avec les hypothèses d'un régime laminaire utilisées dans le code [11]. Les résultats sont représentés figure 3.10, il apparaît une augmentation de la concentration moyenne en Ni à la fin de l'échantillon lorsque l'on augmente le niveau de brassage. Elle passe de 3.5% en poids de Ni pour un brassage de 1 mT à 4,5 % en poids de Ni pour un brassage dix fois plus intense. Cette observation confirme qualitativement les observations et les mesures expérimentales. En ce qui concerne la concentration en Ni lors de la solidification d'un barreau avec un niveau de brassage fixe, elle augmente très rapidement lorsque l'on passe du solide au liquide. La composition en Ni passe de 1% dans le solide à 4,5% dans le liquide environnant pour un champ magnétique de 10 mT. Cette différence de concentration est engendrée par le transport du soluté lors du brassage, ce transport s'effectue à l'échelle de l'échantillon.

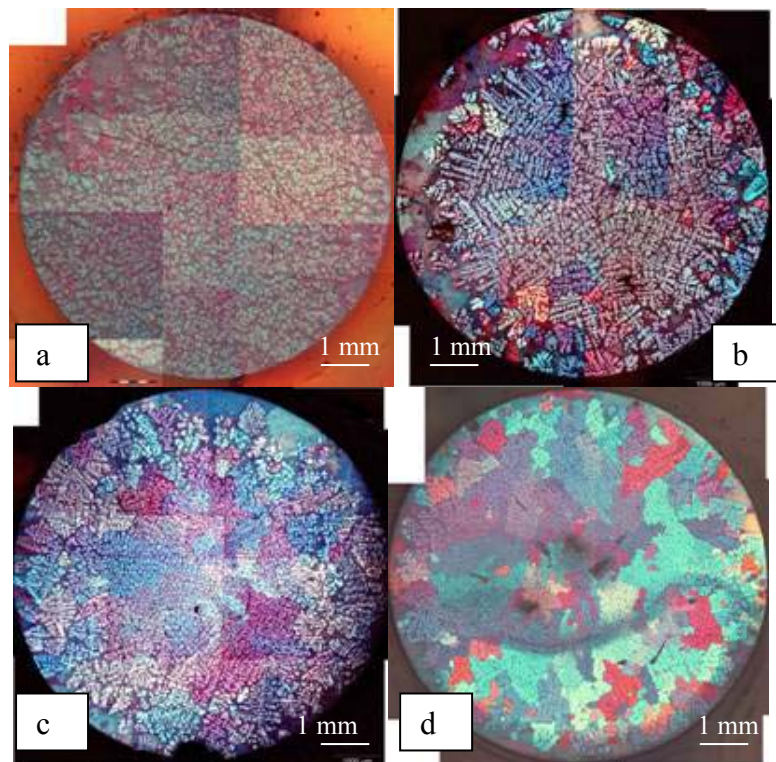


**Figure 3.10 :** Modélisation de la quantité de Ni au cours de la solidification dirigée d'un alliage Al-3,5%Ni non affiné soumis à différents niveaux de brassage.

### 3.3 Influence sur la taille de grains

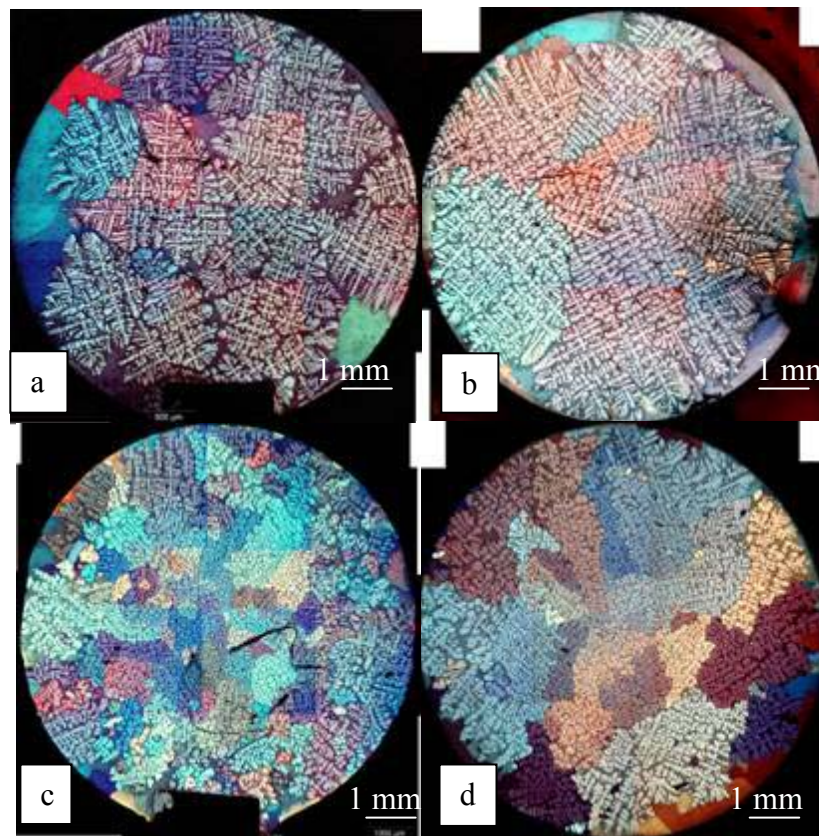
#### 3.3.1 Résultats expérimentaux

Des mesures de tailles de grains ont été effectuées à partir des coupes transverses choisies tout les deux centimètres de solidification. Afin d'identifier chaque grain nous avons procédé à une anodisation de ces coupes avant de réaliser les mesures de taille à l'aide du traitement des images (cf. chapitre II). Sur les figures 3.11 (alliage affiné) et 3.12 (alliage non affiné), apparaissent les coupes utilisées pour réaliser ces mesures. Nous avons choisi d'étudier la taille de grain car à partir de métallographie telles que celles obtenues figures 3.11 et 3.12, on ne peut pas mesurer l'espacement primaire. Il est clair que la mesure de la taille de grains ne correspond pas exactement à l'espacement primaire mais, en première approximation c'est une mesure comparable lorsque les grains sont constitués d'une dendrite. Il est peu vraisemblable en effet qu'une même dendrite puisse s'étendre sur plusieurs grains à cause de la perturbation « sillon » que crée le joint de grain sur l'interface solide-liquide. Il y a donc au moins une (et souvent plus d'une) dendrite par grain. Si la taille de grain au départ se trouvait être plus petite que l'espacement permis aux dendrites, il y aurait élimination de grains durant le transitoire initial de la solidification.

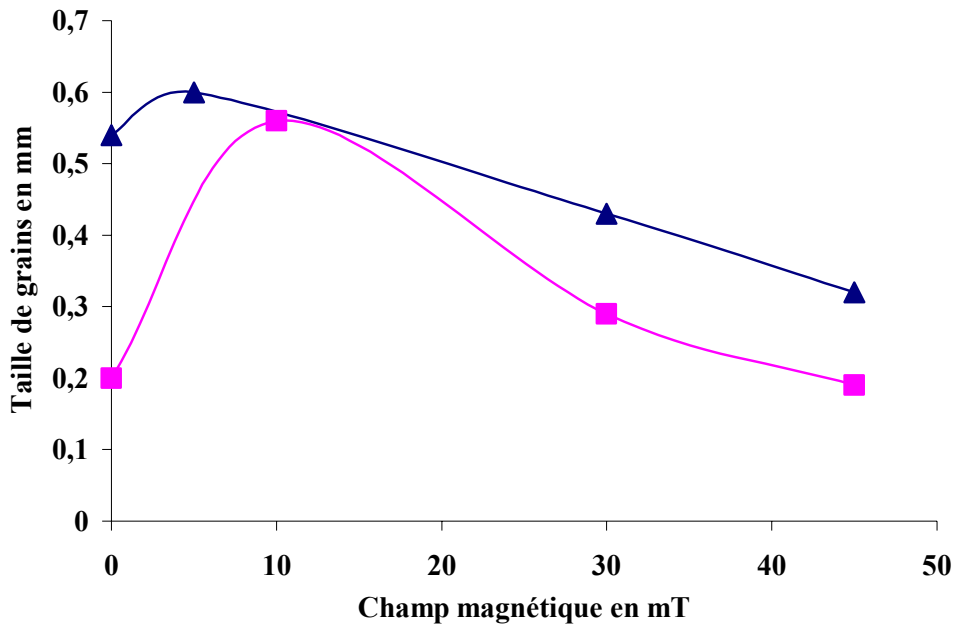


**Figure 3.11 :** Anodisation des échantillons pour la mesure de la taille moyenne de grain pour un alliage Al-Ni<sub>3,5</sub>%pds affiné a)  $B = 0 \text{ mT}$  ;  $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$  ;  $G_L = 30 \text{ K.cm}^{-1}$  b)  $B = 10 \text{ mT}$  ;  $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$  ;  $G_L = 28 \text{ K.cm}^{-1}$  c)  $B = 30 \text{ mT}$  ;  $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$  ;  $G_L = 24 \text{ K.cm}^{-1}$  d)  $B = 45 \text{ mT}$  ;  $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$  ;  $G_L = 20 \text{ K.cm}^{-1}$ .

Pour un alliage affiné, l'évolution de l'espacement représentée figure 3.13, diminue lorsque le champ magnétique augmente. La valeur obtenue autour de 10 mT est bien supérieure à la valeur mesurée sans champ magnétique. Ceci n'est pas dû à une erreur de mesure, mais pour un alliage affiné à ce niveau de convection il apparaît une structure mixte (figure 3.11 b) entre des grains équiaxes sur la périphérie et colonnaires au centre. Par conséquent, la mesure des tailles de grains est assez difficile à réaliser. Après 30 mT, la structure devient colonnaire ce qui facilite les mesures. La tendance générale est une diminution de la taille moyenne de grains lorsque l'on augmente l'intensité du brassage. Cette diminution de la taille des grains est aussi observée dans le cas d'un alliage non affiné (figure 3.13). Nous observons un réseau de dendrites de plus en plus compact au centre et dépourvu de phase eutectique, qui est rejetée vers la périphérie.



**Figure 3.12** : Anodisation des échantillons pour la mesure de la taille moyenne de grain pour un alliage Al-Ni<sub>3,5</sub>%pds non affiné a)  $B = 0 \text{ mT}$  ;  $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$  ;  $G_L = 26 \text{ K.cm}^{-1}$  b)  $B = 5 \text{ mT}$  ;  $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$  ;  $G_L = 24 \text{ K.cm}^{-1}$  c)  $B = 30 \text{ mT}$  ;  $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$  ;  $G_L = 22 \text{ K.cm}^{-1}$  d)  $B = 45 \text{ mT}$  ;  $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$  ;  $G_L = 20 \text{ K.cm}^{-1}$ .



**Figure 3.13** : Taille de grains lors de la solidification d'un alliage affiné (carrée) et d'un alliage non affiné (triangle) en fonction du champ magnétique.

### 3.3.2 Espacement primaire en présence de convection forcée

Afin d'étudier l'effet de la convection forcée sur l'espacement primaire, nous nous basons sur le modèle de Lehmann *et al.* [13].

Lehmann *et al.* [13] utilisent l'équation de transport (Kurz et Fischer [18]) à la pointe puis à l'aide de la surfusion interdendritique déterminée par Flemings [14], ils établissent une relation pour l'espacement primaire dans le cas d'une diffusion pure :

$$\lambda_0 = \sqrt{2\pi} \left(\frac{D}{V}\right)^{0.25} \left(\frac{\Delta T_0}{G}\right)^{0.5} \left(\frac{\Gamma}{\Delta T_0}\right)^{0.25} k^{0.25}, \quad (3.1)$$

où  $\Delta T_0$  désigne l'intervalle de solidification,  $\Gamma$  le coefficient de capillarité et  $k$  le coefficient de partage.

Avec des hypothèses telles qu'une perméabilité polynomiale ainsi qu'une formulation de Darcy (la zone pâteuse est traitée comme un milieu poreux) associée à une condition de court-circuit hydraulique à l'interface (vitesse nulle), Lehmann *et al.* déduisent l'équation (3.2) permettant de déterminer l'espacement primaire dans le cas d'une convection forcée :

$$\left(\frac{\lambda}{\lambda_0}\right)^2 = \frac{2}{1 + \sqrt{1 + 2Gr(e-b)}}, \quad (3.2)$$

où  $\lambda_0$  désigne l'espacement primaire dans le cas purement diffusif,  $Gr$  le nombre de Grashoff,  $e$  la taille du creuset adimensionnée par la profondeur de la zone pâteuse et  $b$  une constante d'intégration.

Une application numérique est effectuée afin de comparer ce modèle avec les résultats obtenus dans le cadre de notre étude. Les données thermo-physiques de l'alliage Al-Ni 3,5%pds sont reportées dans l'annexe 1. Le calcul donne une valeur de  $\lambda_0 = 483 \mu\text{m}$  dans le cas diffusif.

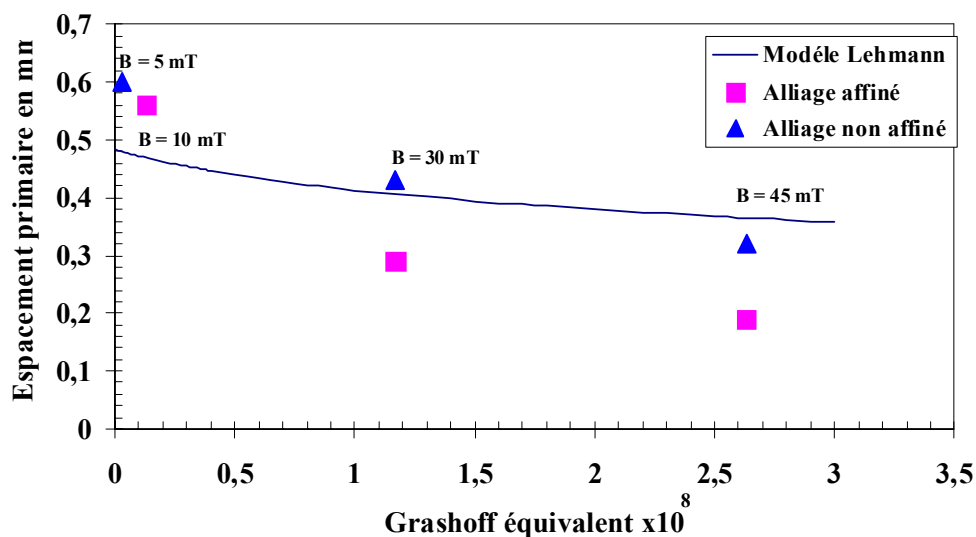
Dans le cas du champ magnétique glissant, le nombre de Grashoff (3.3) est défini comme le rapport de la force de Laplace  $F$  à la force de frottement au sein de la zone pâteuse  $F_{frot}$  :

$$Gr = \frac{F}{F_{frot}} = \frac{\sigma B^2 p f K}{\rho \nu R}, \quad (3.3)$$

où  $\sigma$  représente la conductivité électrique de l'alliage,  $p$  le pas polaire du moteur linéaire ( $p=10^{-1}$  m),  $f$  la fréquence d'utilisation du moteur ( $f=50$  Hz), et  $K$  représente la perméabilité. Dans ce contexte la perméabilité  $K$  est déterminée à l'aide de la formule de Carman-Kozeny :

$$K = \frac{g_l^3 \lambda^2}{\pi^2 y t^2 (1 - g_l)^2} \quad (3.4)$$

où  $y=5$ ,  $t=2$ ,  $g_l$  représente la fraction liquide,  $\lambda$  l'espacement primaire. La fraction liquide est fixée à 0,6 (valeur prise classiquement pour cet alliage) et l'espacement primaire utilisé dans ce cas est de  $200 \mu\text{m}$ , cette valeur est donnée par la mesure expérimentale pour l'alliage affiné sans champ magnétique. On obtient une valeur de  $K \sim 10^{-10} \text{ m}^2$ . L'équation 3.2 est représentée sur la figure 3.14, on constate que l'espacement primaire diminue lorsque le niveau de convection augmente ce qui correspond qualitativement aux expériences.

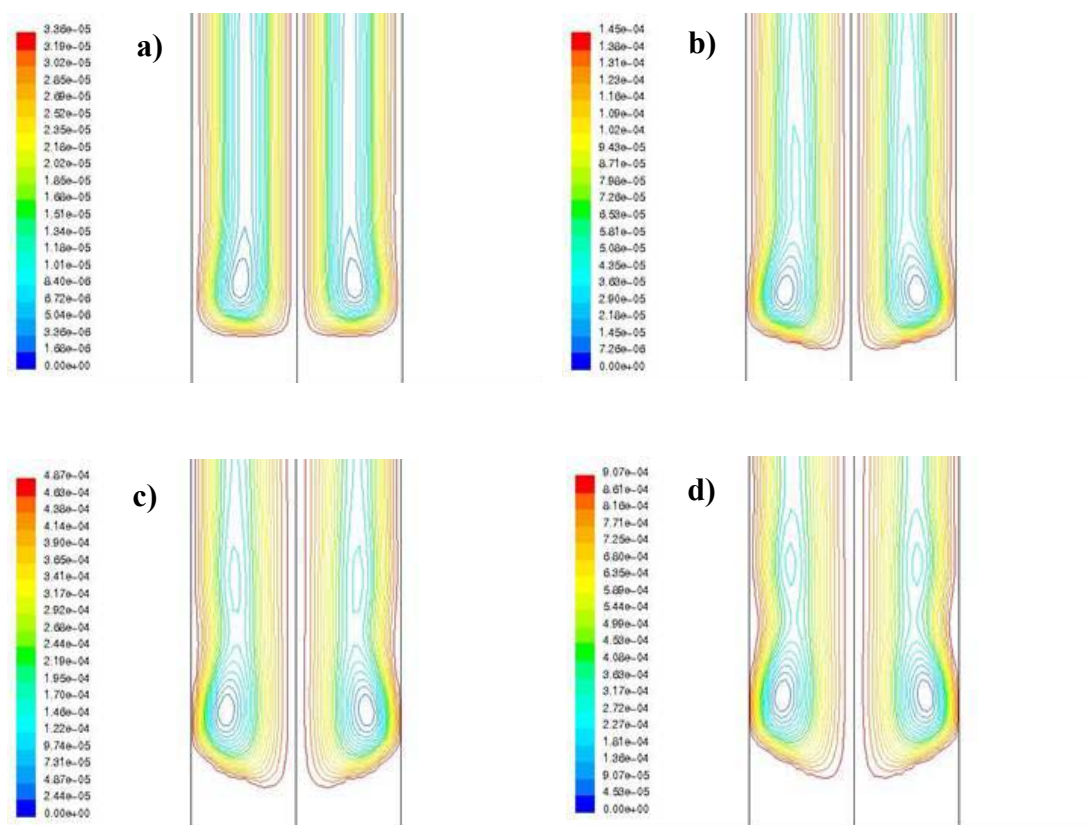


**Figure 3.14** : Modèle de Lehmann appliqué à notre étude.

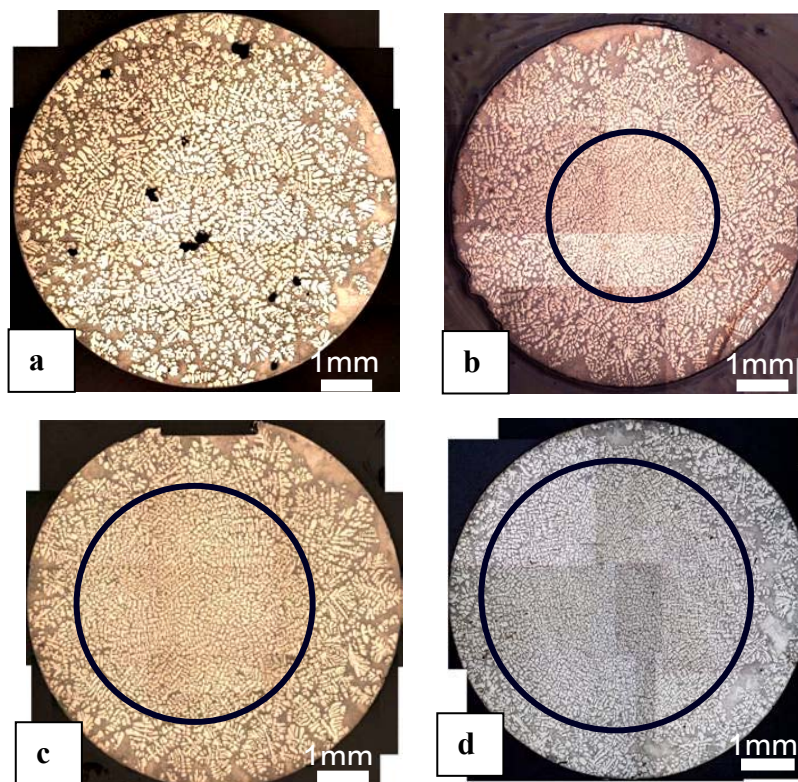


### 3.3.3 Interprétation phénoménologique

La vitesse du fluide entrant dans la zone pâteuse influe directement sur les conditions de solidification [15, 16], en effet lorsque le fluide entre dans la zone pâteuse, il introduit un liquide plus chaud et plus riche en soluté. Dans le cas d'une configuration où le champ magnétique impose un mouvement dirigé vers le bas au centre de l'échantillon, il apparaît une couche visqueuse sur le bord de l'échantillon dans laquelle le liquide est dirigé vers le haut. De plus, la taille de cette couche visqueuse diminue lorsque le niveau de convection augmente (figure 3.15) laissant ainsi une place de plus en plus grande à la région centrale où le liquide est entrant. En effet, nous avons pu observer dans nos expériences une augmentation de la zone où la structure est compacte avec le champ (figure 3.16). Des simulations numériques confirment cette hypothèse (figure 3.15). Cette nouvelle répartition du flux entrant modifie le réseau dendritique en balayant le soluté vers la périphérie. Il apparaît alors une structure dendritique compacte au centre car le soluté rejeté par la dendrite est balayé vers l'extérieur. A la périphérie, ce soluté est déposé permettant à la composition d'atteindre la composition eutectique et de développer une zone eutectique.



**Figure 3.15** : Lignes de courant en fonction de l'intensité du brassage déduites de la simulation numérique  $V = 10 \mu\text{m/s}$  et  $G = 30 \text{ K/cm}$  a)  $B = 5 \text{ mT}$ , b)  $B = 10 \text{ mT}$ , c)  $B = 20 \text{ mT}$ , d)  $B = 30 \text{ mT}$ .



**Figure 3.16** : Zone compacte en fonction du brassage électromagnétique (alliages affinés) a)  $B = 10 \text{ mT}$ ;  $G_L = 28 \text{ K.cm}^{-1}$  c)  $B = 30 \text{ mT}$ ;  $G_L = 24 \text{ K.cm}^{-1}$  c)  $B = 45 \text{ mT}$ ;  $G_L = 20 \text{ K.cm}^{-1}$ . d)  $B = 350 \text{ mT}$ ;  $G_L = 8 \text{ K.cm}^{-1}$ .

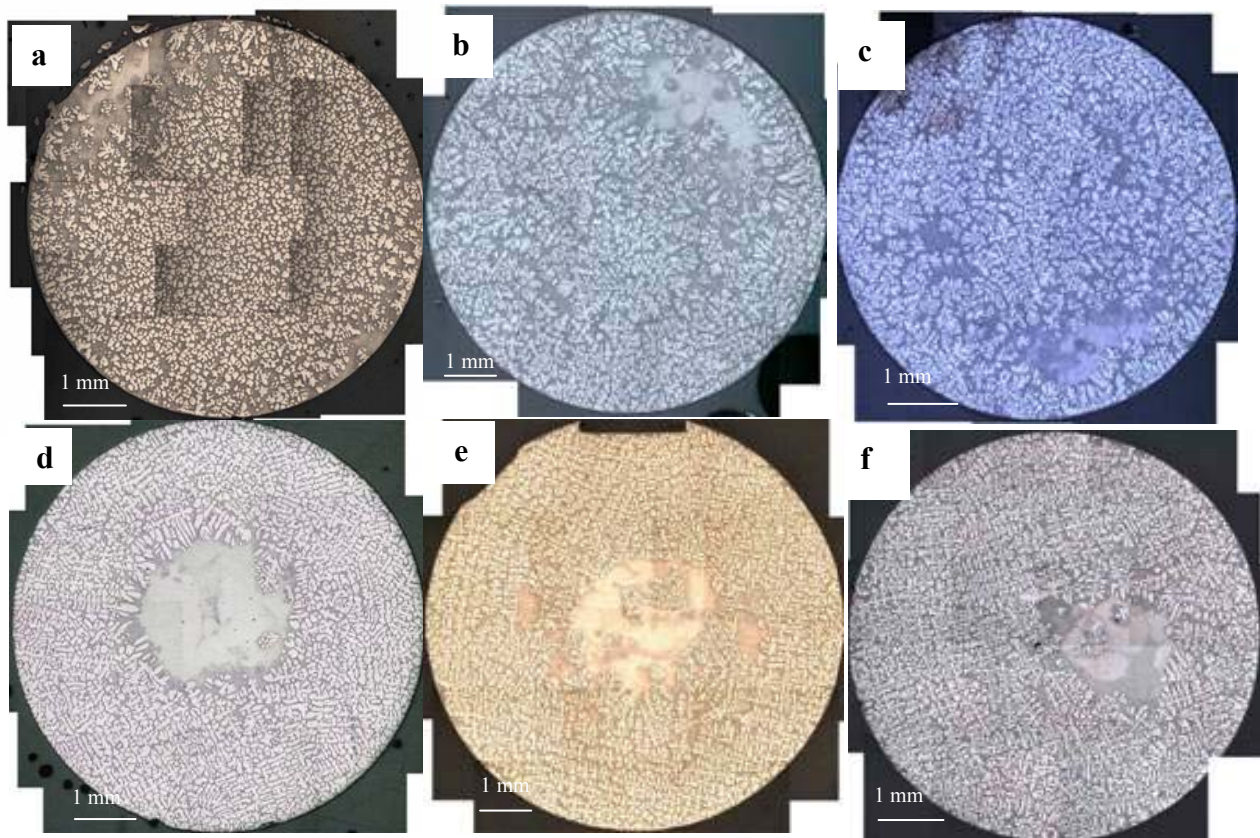
#### 4 Convection forcée dans le sens opposé à la convection naturelle

Après avoir montré l'effet d'un écoulement forcé qui va dans le même sens que la convection naturelle, nous proposons dans ce paragraphe d'étudier les effets d'un écoulement qui s'oppose à la convection naturelle. Dans ce cas, nous avons la possibilité d'étudier la compétition entre l'écoulement forcé et la convection naturelle.

##### 4.1 Macroségrégation radiale

###### 4.1.1 Résultats expérimentaux

Dans cette configuration, l'écoulement forcé transporte le soluté de la périphérie vers le centre de l'échantillon contrairement à la convection naturelle. Il apparaît alors, naturellement une compétition entre les deux phénomènes. Rappelons cependant que la convection naturelle dans cet alliage agit dans une zone tampon très proche de la zone pâteuse alors que l'écoulement forcé est à l'échelle de l'échantillon.



**Figure 3.17** : Coupes transverses après 2 cm de solidification (régime stationnaire) d'un alliage affiné en présence de convection forcée dans le sens opposé à la convection naturelle a)  $B = 0$  mT;  $G_L = 30$  K.cm<sup>-1</sup> b)  $B = 5$  mT;  $G_L = 28$  K.cm<sup>-1</sup> c)  $B = 10$  mT;  $G_L = 24$  K.cm<sup>-1</sup> d)  $B = 30$  mT;  $G_L = 22$  K.cm<sup>-1</sup> e)  $B = 45$  mT;  $G_L = 20$  K.cm<sup>-1</sup> f)  $B = 350$  mT;  $G_L = 8$  K.cm<sup>-1</sup>.

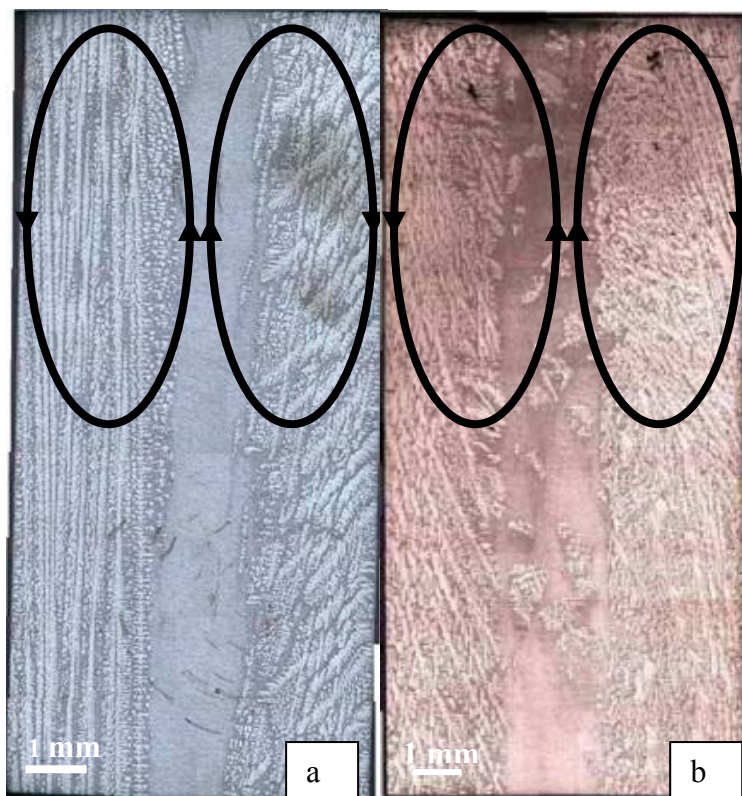
Malgré cette différence d'échelle, nous observons bien une compétition entre les deux phénomènes (figure 3.17). En effet, lorsque l'écoulement forcé est prédominant, il impose une accumulation du soluté au centre (présence d'un canal ségrégré central) car les boucles de convection induisent un mouvement qui est descendant en périphérie et ascendant au centre. Sur la figure 3.17, nous n'observons ce phénomène qu'à partir d'une valeur située autour de 30 mT. Avant ce seuil, la convection naturelle n'est pas négligeable par rapport à la convection forcée ce qui se traduit par un décalage de la position du canal ségrégré vers la périphérie. Après ce seuil, le canal ségrégré s'impose au centre et l'effet de la convection naturelle n'est plus visible.

#### 4.1.2 Simulation numérique

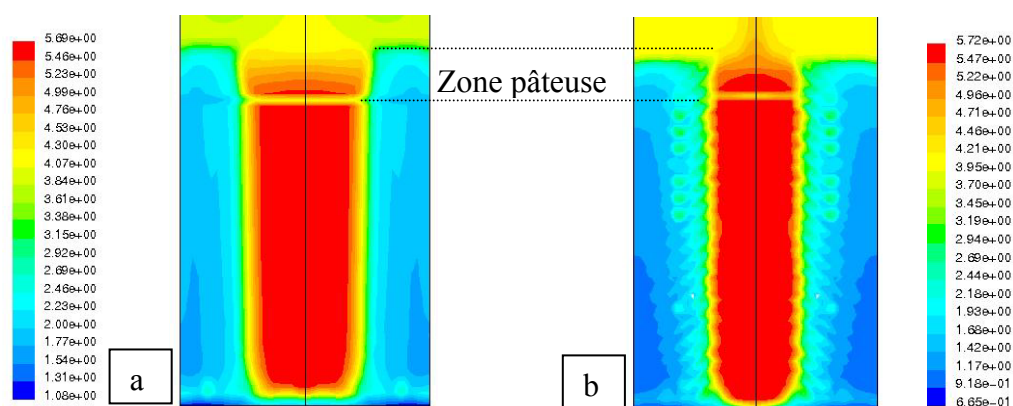
La comparaison des résultats expérimentaux (figures 3.17 et 3.18) avec ceux obtenus avec le code développé au sein du laboratoire montre une bonne concordance qualitative des



résultats (figure 3.19) bien que la simulation numérique ne permette pas de rendre compte de la compétition entre la convection naturelle et la convection imposée par le champ magnétique. En effet, la simulation néglige le gradient de température radial observé lors des expériences.

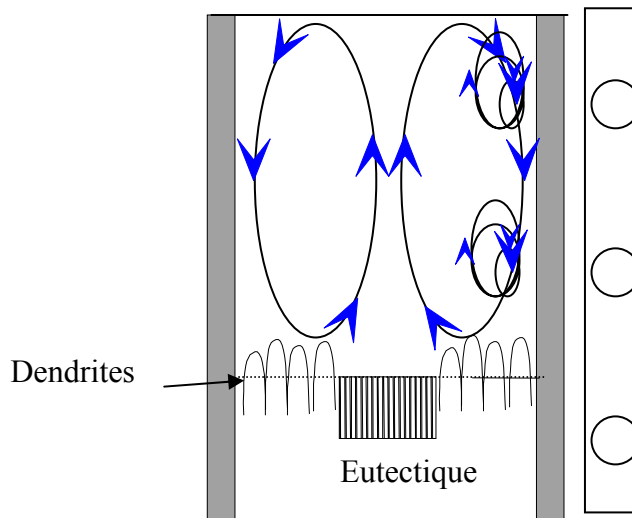


**Figure 3.18** : Solidification d'un alliage Al-Ni 3.5%pd affiné avec une convection forcée qui s'oppose à la convection naturelle de l'ordre de 30 mT. ( $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$ ) a)  $B = 30 \text{ mT}$  ;  $G_L = 22 \text{ K.cm}^{-1}$  de 2.5 mm à 4.5 mm a)  $B = 45 \text{ mT}$  ;  $G_L = 20 \text{ K.cm}^{-1}$  de 2.5 mm à 4.5 mm.



**Figure 3.19** : Simulation de la solidification d'un alliage Al- Ni 3.5%pd avec une convection forcée dans le sens opposé à la convection naturelle : Concentration moyenne. a)  $B = 5 \text{ mT}$  ; b)  $B = 10 \text{ mT}$  (la ligne faune à l'intérieur du canl ségrégué correspond à la position de la température eutectique).

De plus, la force imposée lors de la simulation numérique, à l'intérieur de l'échantillon ne tient pas compte des effets de bout et des effets des pôles. Wang a montré [17] que l'écoulement imposé par le champ magnétique glissant (moteur linéaire) était perturbé par la présence de vortex au niveau des pôles du moteur (figure 3.21). Ces perturbations ne peuvent pas être prises en compte dans le modèle utilisé car elles font appel à des écoulements non laminaires.



**Figure 3.20** : Influence des effets de pôles sur l'écoulement.

Malgré tout, on peut utiliser la simulation numérique pour des comparaisons qualitatives avec nos expériences. Sur la figure 3.20 est représentée la composition moyenne au cours de la solidification de l'alliage Al- Ni 3.5%pds. La couleur rouge représente la composition eutectique et la couleur bleue un appauvrissement en soluté. On constate la présence d'un gros canal ségrégué au centre de l'échantillon qui démontre une accumulation du soluté pouvant atteindre la composition eutectique. Ce canal est observé lors de la solidification dirigée en présence d'un champ magnétique à partir d'un champ de l'ordre de 30 mT (figures 3.18 et 3.19). L'appauvrissement en soluté à la périphérie du canal implique un réseau dendritique assez compact comme le montre les résultats expérimentaux (figures 3.18 et 3.19). La simulation nous permet de constater que la taille du canal diminue lorsque le niveau de convection augmente ce qui est le cas également pour les expériences (figure 3.18). De plus, la simulation indique que la profondeur de la zone pâteuse diminue lorsque le niveau de convection augmente.

Lorsque la convection forcée domine sur la convection naturelle, on constate un changement de structure (figure 3.18), elle passe d'un état équiaxe vers un état colonnaire, ce qui entraîne un réseau de plus en plus compact en périphérie. La croissance de ces dendrites

colonnaires est complètement perturbée en présence de convection forcée, sur la figure 3.18, on peut même constater une dissymétrie autour du canal ségrégé.

## 5 Conclusion

Il a été observé que la convection naturelle induite par une différence entre les conductibilités thermiques du solide et du liquide était non négligeable dans le cas d'un alliage Al-Ni 3,5%*pds*. L'apparition d'une macroségrégation radiale présente sous la forme d'un liseré eutectique est inévitable lors de la solidification dirigée de cet alliage.

Nous avons montré qu'il est possible de contrôler l'écoulement dans le bain liquide à l'aide d'un champ magnétique glissant et par conséquent de modifier les macroségrégations. Le choix d'un champ magnétique glissant est justifié par la simplicité de l'écoulement ainsi que par la maîtrise de la direction de la force de Laplace.

L'effet du champ magnétique sur la macroségrégation dépend essentiellement de la direction de la force de Laplace.

Lorsque l'écoulement forcé va dans le sens de la convection naturelle, la taille du liseré eutectique diminue quand le niveau de brassage augmente. Le réseau dendritique devient de plus en plus compact au centre et le soluté est rejeté vers la périphérie, où il est accéléré à travers les couches visqueuses présentes sur les parois. Ce balayage engendre la présence d'une macroségrégation longitudinale le long de l'échantillon.

Lorsque l'écoulement forcé s'oppose à la convection naturelle, après une compétition avec celle-ci, il s'établit un régime qui accumule le soluté au centre de l'échantillon et donne naissance à un canal central ségrégé. Ce canal ségrégé pompe une grande partie du soluté ce qui entraîne un réseau dendritique compact sur la périphérie.

En conclusion la macroségrégation engendrée par la convection naturelle (liseré eutectique) peut être pilotée à l'aide d'un champ magnétique glissant. L'écoulement forcé s'établit à l'échelle de l'échantillon engendrant ainsi la présence d'une macroségrégation longitudinale qui n'existait pas en convection naturelle.

### Références du chapitre III

1. M.D. Dupouy, D. Camel, J.E. Mazille and I. Hugon, *Columnar to Equiaxed Transition in a refined Al-Cu Alloy under Diffusive and Convective Transport Conditions*, Materials Science Forum **329-330**, (2000) 25
2. Y. Dabo, *Dynamique de formation de réseaux cellulaires en solidification dirigée d'alliages binaires*, Thèse Université Paul Cézanne Marseille 2001
3. M.D. Dupouy and D. Camel, *Comparative study of the columnar-Equiaxed Transition in microgravity and on ground during directional solidification of a refined Al-3.5 wt% Ni alloy*, Proceedings of J. Phys. IV France 11 (2001)
4. H. Nguyen Thi, B. H. Zhou, G. Reinhart and B. Billia, *Influence of forced convection on columnar microstructure during directional solidification of Al-Ni alloys*, Proc. of the SG04 conference, Miskolc, September 4-9 (2004)
5. M.H. Burden, D. J. Hebditch and J.D. Hunt, *Macroscopic stability of a planar, cellular or dendritic interface during directional freezing*, Journal of Crystal Growth, **20** (1973) 121
6. J.D. Hunt, *Steady state columnar and equiaxed growth of dendrites and eutectic*, Materials Science and Engineering, **65** (1984) 75
7. L. Sylla, *Solidification dirigée en présence de convection naturelle ou forcée: Etude des microstructures dendritiques*, DEA INPG (2003)
8. M. Medina, Y. Du Terrail, F. Durand, and Y. Fautrelle, *Channel segregation during solidification and the effects of an AC Travelling Magnetic Field*, Metallurgical and Materials Transactions B **35B**, (2004) 1
9. J. Dagner, M. Hainke, J. Friedrich and G. Müller, *Effects of time-dependent magnetic fields on directional solidification of AlSi7 alloys*, Proceedings of international congress EPM (2003)
10. N. Ramachandran, K. Mazuruk and M.P. Volz, *Use of travelling magnetic fields to control melt convection*, J. Jpn Soc. Microgravity Appl. **17**, No 2, (2000) 98
11. A. Ciobanas, F. Baltaretu and Y. Fautrelle, *Ensemble averaged two-phase eulerian model for columnar/equiaxed solidification of a binary alloy*, Proc. of the SG04 conference, Miskolc, September 4-9 (2004)
12. H. Nguyen Thi, B. Drevet, J.M. Debierre, D. Camel, Y. Dabo and B. Billia, *Preparation of the initial solid liquid interface and melt in directional solidification*, Journal of Crystal Growth **253**, (2003) 539

13. P. Lehmann, R. Moreau, D. Camel and R. Bolcato, *A simple analysis of the effect of convection on the structure of the mushy zone in the case of horizontal Bridgman solidification*, Journal of Crystal Growth, **183**, (1998) 690
14. C. Flemings, *Solidification Processing*, Mc Graw-Hill, New York, (1974)
15. B. Cantor and A. Vogel, *Dendritic Solidification and Fluid Flow*, J. of Cryst. Growth, **41** (1977) 109
16. R. Ananth and W. N. Gill, *Dendritic Growth in Microgravity and Forced Convection*, J. of Cryst. Growth **179** (1997), 263
17. X. D. Wang, *Communication privée*, EPM Décembre (2004)
18. W. Kurz and D. J. Fisher, *Fundamentals of Solidification*, Trans. Tech. Pub. (1990)

# **Chapitre IV : Structure de grains en présence d'un champ magnétique glissant**

## **1 Introduction**

L'analyse et la compréhension des phénomènes à l'origine de la solidification dendritique équiaxe sont beaucoup plus complexes que pour la croissance colonnaire, en raison de la multitude de mécanismes impliqués (nucléation hétérogène et/ou fragmentation et recalescence, cinétique de croissance). Les effets dus à la convection sont également plus complexes en raison du mouvement des particules et des grains libres dans le liquide. La microstructure équiaxe peut être obtenue par deux mécanismes connus comme nous l'avons vu au chapitre I. Le premier consiste à introduire des particules affinantes lors de l'élaboration de l'alliage et le second consiste à créer des grains équiaxes à partir d'une structure colonnaire par fragmentation ou par d'autres mécanismes. Dans les deux cas, la convection joue un rôle très important dans la genèse et le transport des germes.

Dans ce chapitre nous avons dissocié l'étude en deux parties, la première consiste à tenter de comprendre quels sont les mécanismes mis en jeu lors de la solidification équiaxe en présence d'affinants en utilisant un champ magnétique glissant. Puis, dans une seconde partie, nous montrons des résultats expérimentaux obtenus lors de la solidification d'un alliage non affiné en présence d'un champ magnétique glissant, dans le but de provoquer la transition colonnaire-équiaxe à partir des dendrites colonnaires et de comprendre le rôle de la convection forcée sur cette transition. Suite à nos travaux sur la macroségrégation, nous nous limitons au cas d'un champ magnétique glissant créant un écoulement dans la même direction que la convection naturelle. En effet, avec un champ créant un écoulement dans l'autre direction, un canal ségrégué central est créé et ne permet pas d'étudier les phénomènes de transition colonnaire-équiaxe.

## **2 Effet de la convection forcée sur la croissance équiaxe en présence de particules affinantes**

### **2.1 Affinage de grains : mécanismes de nucléation**

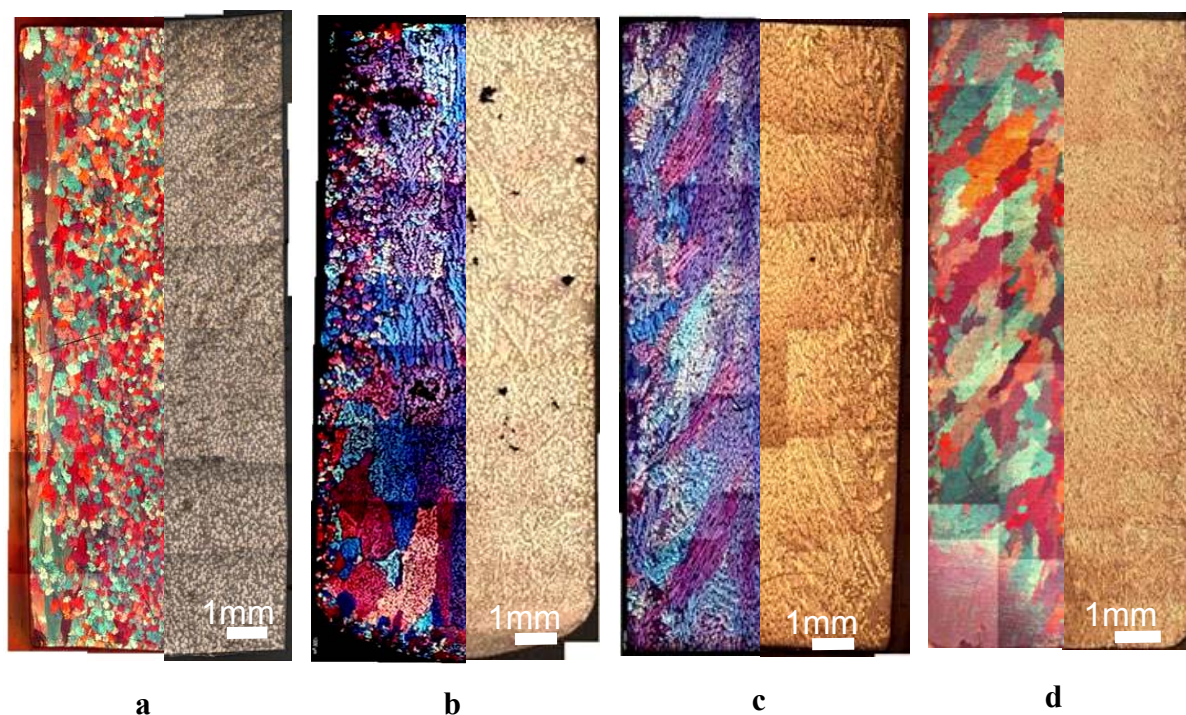
Les particules choisies sont celles utilisées classiquement dans l'industrie. Ces particules affinantes (Al-Ti-B) sont constituées de particules de TiB<sub>2</sub> de diamètre 0,1~10 µm et de



particules d' $\text{Al}_3\text{Ti}$  de diamètre 20-50  $\mu\text{m}$  dispersées dans une matrice d'Al. Seul,  $\text{Al}_3\text{Ti}$  est un nucléant efficace pour l'aluminium [1] mais il est instable. Il se dissout rapidement dans l'alliage fondu où la concentration totale de Ti est à la limite de solubilité. Des analyses microscopiques [1, 2, 3] ont révélé que seules 1% des particules de  $\text{TiB}_2$  sont des nucléants efficaces. Plusieurs études [1, 2] ont alors mis en évidence qu'en présence d'un excès de Ti, de fines couches de  $\text{Al}_3\text{Ti}$  apparaissent à la surface des particules de  $\text{TiB}_2$  et restent stables (et ceci même pour de plus faibles quantités de Ti). La nucléation des cristaux  $\alpha(\text{Al})$  sur les particules se fait uniquement sur les faces  $\{0001\}$  des borures revêtus de couches d' $\text{Al}_3\text{Ti}$ . Enfin, la surfusion du bain liquide environnant doit être supérieure à la surfusion de nucléation [4] pour que des grains d'aluminium puissent germer sur les particules affinant.

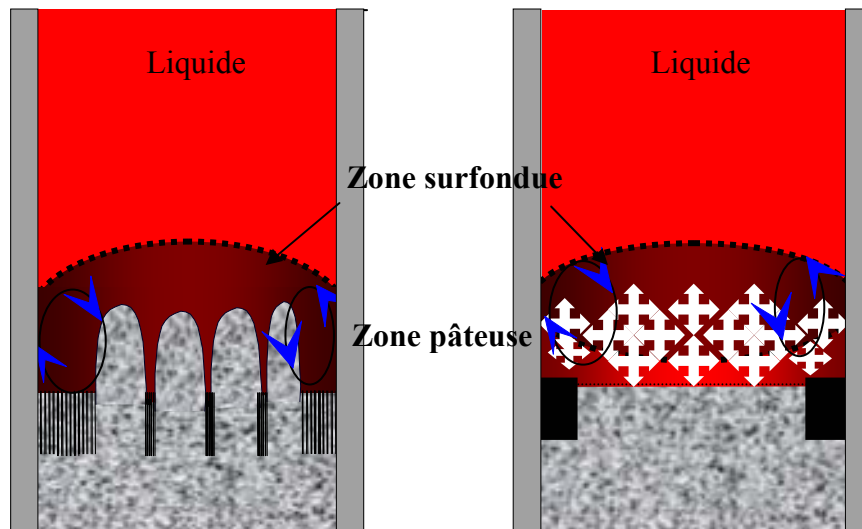
## 2.2 Expériences

Comme nous l'avons déjà précisé, l'alliage choisi est Al-Ni 3,5%pds auquel on a ajouté des affinant de type Al-Ti-B pour faciliter la nucléation de grains équiaxes dans le bain liquide. Pour une vitesse de tirage de  $10\mu\text{m.s}^{-1}$  et sans champ appliqué, la structure est équiaxe sur tout l'échantillon (figure 4.1 a) comme attendu d'après les modèles disponibles [4, 5] dans les conditions de l'expérience.



**Figure 4.1** : Effet de la convection forcée sur la structure de grains dans un alliage Al-Ni 3,5%pds affiné  $V = 10\mu\text{m.s}^{-1}$  ; anodisation (coté gauche), polissage mécanique (coté droit) a)  $G = 30 \text{ K.cm}^{-1}$ ;  $B = 0 \text{ mT}$  b)  $G = 26 \text{ K.cm}^{-1}$ ;  $B = 10 \text{ mT}$  c)  $G = 20 \text{ K.cm}^{-1}$ ;  $B = 30 \text{ mT}$  d)  $G = 8 \text{ K.cm}^{-1}$ ;  $B = 350 \text{ mT}$ .

Lorsque l'on introduit un certain niveau de convection à l'aide d'un champ magnétique glissant de l'ordre de 10 mT, la structure équiaxe laisse place à un régime mixte entre des grains équiaxes situés en périphérie et des grains colonnaires situés au centre (figure 4.1 b). A partir de 30 mT et jusqu'à 350 mT, la structure évolue vers une structure de grains allongés (figure 4.1 c et d) qui croissent de la périphérie vers le centre de l'échantillon.



**Figure 4.2** : a) Front colonnaire b) Front effectif équiaxe.

Dans le cas d'une croissance colonnaire en l'absence de champ (figure 4.2a), il apparaît une zone surfondue en avant du macro-front de solidification, qui résulte du rejet de soluté par les dendrites au cours de la solidification. Cette zone est fondamentale pour la germination et la croissance des grains équiaxes lors de la transition colonnaire-équiaxe [4, 5]. Dans le cas de la croissance équiaxe d'un alliage affiné, des expériences de solidification équiaxe effectuées in situ et en temps réel [6] sur un alliage Al-Ni 3,5% pds affiné ont permis de mettre en évidence la présence d'un front effectif de grains équiaxes, défini par le plan moyen situé au dessus des pointes des dendrites équiaxes (figure 4.2 b). Le rejet de soluté créé par ce front induit une zone surfondue riche en soluté en avant du front, équivalente à celle obtenue avec un front colonnaire (figure 4.2 a). Cette zone joue un rôle fondamental dans la naissance et la croissance d'un germe équiaxe sur une particule affnante. En effet, si la surfusion de constitution du bain liquide est supérieure à la surfusion de nucléation, de nouveaux grains équiaxes peuvent germer et croître, et le front équiaxe se propage.

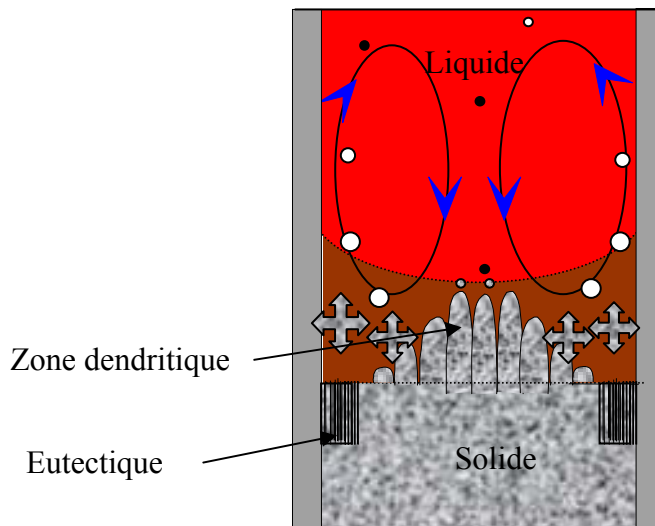
La convection forcée qui modifie le transport du soluté et la température a une influence fondamentale sur cette zone surfondue ainsi que sur la nucléation et la croissance des grains



équiaxes, comme le montre la figure 4.1. Le nombre de germes activés à l'intérieur de la zone surfondue diminue avec le niveau de brassage. En effet, à partir de 30 mT et jusqu'à 350 mT, la structure de grains devient complètement allongée. Les perturbations engendrées par l'écoulement forcé sur cette zone surfondue sont donc décisives sur la morphologie des futurs grains équiaxes. La nucléation des grains s'amorce sur la périphérie (l'endroit le plus favorable pour la germination et la survie des germes car la couche solutale y a une taille plus importante), d'où ils croissent en direction du nouveau gradient de température qui s'établit en présence de l'écoulement forcé. Une étude plus approfondie de l'effet de la convection forcée sur la zone de surfusion de constitution est proposée dans le paragraphe suivant. Les boucles de recirculation proches de la zone pâteuse induisent une composante radiale du gradient de température qui impose une direction privilégiée de croissance aux grains (de la périphérie vers le centre de l'échantillon figure 4.1 c et d). Les grains obtenus à partir d'une convection forcée de l'ordre de 30 mT sont de type équiaxe dans le sens où ils germent librement et ne sont pas attachés à un front colonnaire, bien que leur croissance ne s'effectue pas de façon isotrope. Nous parlerons dans la suite de grains « équiaxes allongés ».

### **2.3 Effet de la convection forcée sur la zone de surfusion de constitution**

La zone située en avant du front de solidification est primordiale pour la croissance équiaxe. Une convection de plus en plus importante entraîne un balayage du soluté au-dessus de l'interface qui ne permet plus autant de germinations et de croissance des grains équiaxes par rapport au cas de la convection naturelle. Plus précisément, en fonction des boucles de convection forcée, la couche solutale est modifiée de façon non uniforme au niveau de l'interface. Par exemple dans le cas de la coexistence entre le régime équiaxe et le régime colonnaire (figure 4.1.b à 10 mT), la zone en avant du front macroscopique de solidification est déformée par l'écoulement (figure 4.3). La zone en surfusion (marron sur la figure 4.3), prend une forme concave qui résulte de la différence de pression (surpression au centre, dépression sur la périphérie) sur le macro-front qui délimite la zone pâteuse. Il apparaît alors au centre, lorsque l'écoulement est descendant, un resserrement des isoconcentrations qui a pour effet immédiat de diminuer localement la taille de la couche solutale donc la zone de germination et de croissance au centre. Par conséquent, des dendrites équiaxes ne peuvent germer et croître qu'à la périphérie d'où la structure observée (figure 4.1.b). Lorsque l'intensité du champ magnétique augmente encore de moins en moins de grains peuvent germer et certains sont probablement emportés par l'écoulement forcé vers des zones chaudes où ils refondent.



**Figure 4.3** : Influence de la convection forcée sur la zone de surfusion de constitution.

Cantor et Vogel [7], ont tenté de modéliser la modification de la taille de la zone pâteuse en fonction de la convection. Pour cela, ils ont proposé un calcul de la couche solutale basé sur une hypothèse de couche limite thermosolutale autour d'une dendrite unique placée dans un écoulement lointain co-axial à la dendrite. Ce modèle laisse le débit du liquide passer autour de la dendrite unique et ignore le caractère recirculant de l'écoulement global à l'échelle du creuset. Il ignore aussi que la fraction du débit pénétrant dans l'espacement interdendritique n'est qu'une faible partie de ce débit recirculant. Mais, il a le mérite de conduire à une expression simple de l'épaisseur de la couche solutale  $\delta_c$  en avant de la pointe de cette dendrite unique

$$\frac{\delta_c}{r_c} = 2Sc^{-\frac{1}{3}} Re_d^{-\frac{1}{2}}, \quad (4.1)$$

où  $r_c$  désigne le rayon de courbure à la pointe de la dendrite et  $Re_d$  le nombre de Reynolds à la pointe de la dendrite.

Cette équation (4.1) suggère que  $\delta_c$  diminue comme  $U^{1/2}$  (si  $U$  désigne la vitesse uniforme du fluide loin de la dendrite) et augmente comme  $D^{1/3}$ . La variation en fonction de  $U$  implique une diminution de la taille de la couche solutale quand  $U$  augmente ce qui correspond bien à nos expériences. Cependant, ce modèle est local et ne prend en compte qu'une dendrite unique, il ne peut donc pas être appliqué strictement au cas d'une zone pâteuse dendritique se développant dans un écoulement recirculant.

Dans le cas d'un brassage imposé par un champ magnétique glissant de l'ordre de 10 mT, nous constatons la présence d'un effet lié au sens de l'écoulement, à proximité de la microstructure. Nous avons vu, qu'au centre, lorsque l'écoulement est descendant dans la

couche la microstructure est colonnaire, à l'inverse, en périphérie, l'écoulement est ascendant dans la boucle induite par le champ magnétique, et la microstructure reste équiaxe pour des champs magnétiques pas très élevés (de l'ordre de 10 mT).

### 2.3.1 Influence de l'écoulement sur la couche solutale

Afin de mieux comprendre cette observation qui suggère que l'épaisseur de la couche solutale varie selon que l'écoulement est entrant ou sortant, nous proposons une étude analytique de la convection solutale au voisinage du macro-front dendritique. Pour modéliser le rejet de soluté par ce macro-front hors de la zone pâteuse, nous adoptons une expression analogue à l'expression classique à l'interface réelle entre le solide et le liquide, modifiée par Karma et Pelcé [8] :

$$-D\left(\frac{\partial C}{\partial z}\right)_\phi = -D\frac{G_L}{m}f^* - (1-f^*)V(1-k)C_\phi, \quad (4.2)$$

où  $V$  désigne la vitesse de tirage,  $f^*$  la fraction liquide,  $G_L$  le gradient de température à l'intérieur du bain liquide,  $m$  la pente du liquidus,  $k$  le coefficient de partage de l'alliage et  $C_\phi$  la concentration au niveau du macro-front. Cette expression peut être considérée comme une condition aux limites imposée au champ de concentration solutale sur le macro-front.

Pour modéliser le champ de vitesse convectif au voisinage du macro-front (figure 4.4), il faudrait pouvoir tenir compte du fait qu'une fraction du débit pénètre dans la zone pâteuse. Si cette fraction est suffisante, on peut penser que la couche limite visqueuse, présente au voisinage d'un front plan, n'a qu'une influence très faible. Dans ce cas, l'écoulement imposé peut être approché par les expressions classiques du mouvement potentiel au voisinage d'un point d'arrêt :

$$\begin{aligned} u_r &= \frac{U}{2} \frac{r}{R} \\ u_z &= -\frac{Uz}{R} - V. \end{aligned} \quad (4.3).$$

où  $U$  désigne l'intensité du brassage,  $V$  la vitesse de tirage,  $R$  le rayon de l'échantillon,  $u_r$  et  $u_z$  désignent les composantes du vecteur vitesse  $\mathbf{U}$  de l'écoulement forcé en coordonnées cylindriques.

Au contraire, si la fraction du débit qui pénètre dans la zone pâteuse est faible, il semble nécessaire d'introduire une couche limite visqueuse. Dans ce cas l'écoulement imposé peut être approché par les expressions :

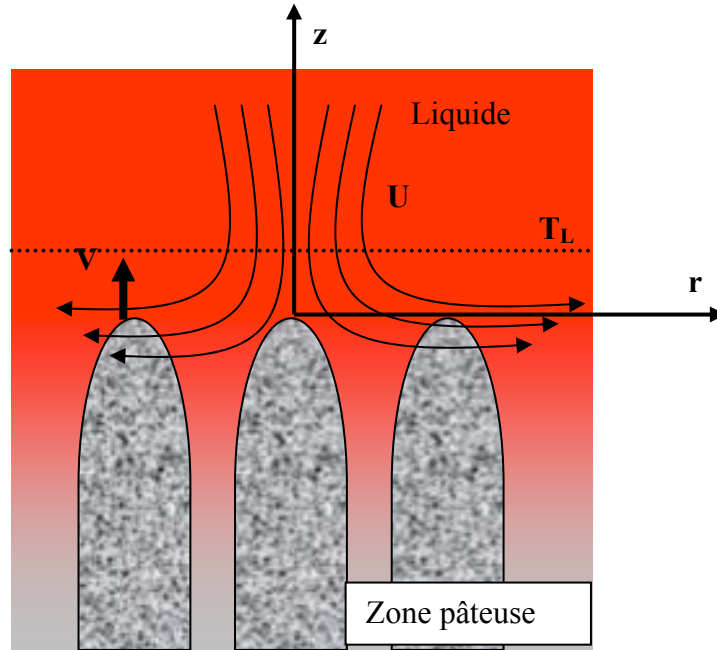
$$\begin{aligned}
u_r &= \frac{U}{2R} \sqrt{\frac{|U|}{2\nu R}} r z \\
u_z &= -\frac{U}{2R} \sqrt{\frac{|U|}{2\nu R}} z^2 - V
\end{aligned}
\tag{4.4},$$

qui permettent d'annuler la composante  $u_r$  en  $z = 0$ .

La réalité semble intermédiaire entre ces deux extrêmes. Notons cependant que la première option permet d'envisager un changement du signe de  $U$  (écoulement descendant si  $U > 0$ , ascendant si  $U < 0$ ). Au contraire, le concept de couche limite n'a de sens que dans le cas du mouvement descendant ( $U > 0$ ).

#### a) Ecoulement potentiel

Le champ de vitesse décrit par ces équations (4.3) introduit les échelles de vitesse  $U$  et de longueur  $R$  qui caractérisent la convection forcée.



**Figure 4.4 :** Ecoulement autour d'un point d'arrêt,  $U > 0$ .

Nous utilisons une deuxième approximation, qui consiste à nous limiter à un voisinage de l'axe, où  $r = 0$ , et où l'équation de conservation du soluté s'écrit

$$\frac{\partial^2 C}{\partial z^2} = \left( -\frac{V}{D} - \frac{Uz}{RD} \right) \frac{\partial C}{\partial z}.
\tag{4.5}$$

Il suffit alors d'ajouter à (4.2) la condition au loin telle que

$$C(z \rightarrow \infty) = C_\infty,
\tag{4.6}$$

pour achever la formulation du problème.

La solution de l'équation (4.5) qui vérifie les conditions (4.2) et (4.6) est de la forme :

$$C(z) - C_\phi = \left[ \frac{G_l}{m} f^* - (1 - f^*)(1 - k) \frac{V}{D} C_\phi \right] \int_0^z e^{-\left(\frac{V}{D}z + \frac{U}{2RD}z^2\right)} dz. \quad (4.7)$$

Pour calculer l'intégrale  $I(z) = \int_0^z e^{-\left(\frac{V}{D}z + \frac{U}{2RD}z^2\right)} dz$ , (4.8)

il est commode de la décomposer de la façon suivante :

$$\int_0^z e^{-\left(\frac{V}{D}z + \frac{U}{2RD}z^2\right)} dz = \int_0^z e^{-\frac{U}{2RD}z^2} \cdot \left(1 - \frac{Vz}{D}\right) dz = \int_0^z e^{-\frac{U}{2RD}z^2} dz - \frac{V}{D} \int_0^z z e^{-\frac{U}{2RD}z^2} dz \quad (4.9)$$

en utilisant l'approximation  $\frac{Vz}{D} \ll 1$ , qui s'appuie sur le fait que, lorsque  $U \gg V > 0$ , la couche solutale est plus mince que la couche diffusive d'épaisseur [9]

$$\delta = \frac{D}{V} \quad (4.10).$$

En introduisant le changement de variable  $x = z\sqrt{\frac{U}{2RD}}$ , le premier terme  $I_1(x)$  devient  $\int_0^x e^{-x^2} \sqrt{\frac{2RD}{U}} dx$ , et on obtient  $I_1(z) = \sqrt{\frac{2RD}{U}} \frac{\sqrt{\pi}}{2} \operatorname{erf}\left(z\sqrt{\frac{U}{2RD}}\right)$ . Le second terme  $I_2(z) = -\frac{V}{D} \int_0^z z e^{-\frac{Uz^2}{2RD}} dz$ , s'intègre par quadrature et l'on arrive à

$$I_2(z) = -\frac{VR}{U} \left(1 - e^{-\frac{Uz^2}{2RD}}\right). \quad (4.11)$$

L'expression de  $I(z)$  est alors

$$I(z) = \frac{D}{V} \left[ \sqrt{\frac{\pi RV^2}{2DU}} \operatorname{erf}\left(z\sqrt{\frac{U}{2RD}}\right) - \frac{RV^2}{UD} \left(1 - e^{-\frac{Uz^2}{2RD}}\right) \right]. \quad (4.12)$$

La distribution de la concentration  $C(z)$  s'en déduit en reportant cette expression dans la solution générale (4.7) :

$$C(z) - C_\phi = \left[ \frac{D}{V} \frac{G_l}{m} f^* - (1 - f^*)(1 - k) C_\phi \right] \left[ \sqrt{\frac{\pi RV^2}{2DU}} \operatorname{erf}\left(z\sqrt{\frac{U}{2RD}}\right) - \frac{RV^2}{UD} \left(1 - e^{-\frac{Uz^2}{2RD}}\right) \right]. \quad (4.13)$$

Afin de faciliter la compréhension de cette équation nous introduisons les nombres de Reynolds, Schmidt et Peclet.  $Pe$ , représente le critère convecto-diffusif introduit par Dupouy *et al.* [10] définis par :

$$Re = \frac{RU}{\nu}, \quad (4.14)$$

$$Sc = \frac{\nu}{D}, \quad (4.15)$$

$$Pe = \frac{VR}{D}, \quad (4.16)$$

$$\Gamma = \frac{U}{V}. \quad (4.17)$$

L'équation (4.13) se met alors sous la forme

$$C(z) - C_\phi = \left[ \frac{D}{V} \frac{G_l}{m} f^* - (1 - f^*)(1 - k)C_\phi \right] \left[ \frac{1}{\Gamma} \sqrt{\frac{\pi}{2}} (\text{Re } Sc)^{\frac{1}{2}} \text{erf}(\alpha) - \frac{\text{Re } Sc}{\Gamma^2} (1 - e^{-\alpha^2}) \right] \quad (4.18)$$

avec  $\alpha = \frac{z}{R} \sqrt{\frac{\text{Re } Sc}{2}}$ .

A partir de la relation (4.18), il est commode d'introduire la fonction normalisée

$$\bar{C} = \frac{C(z) - C_\infty}{C_\phi - C_\infty}, \quad (4.19)$$

qui conduit à :

$$\bar{C} = \frac{(\text{Re } Sc)^{\frac{1}{2}} e^{-\alpha^2} - \Gamma \sqrt{\frac{\pi}{2}} (1 - \text{erf}(\alpha))}{(\text{Re } Sc)^{\frac{1}{2}} - \Gamma \sqrt{\frac{\pi}{2}}}. \quad (4.20)$$

Cette expression permet de calculer une valeur  $\delta_{cl}$  de l'épaisseur de la couche solutale amincie (lorsque l'écoulement est descendant :  $U > 0$ ), en recherchant la valeur  $\alpha_{c1}$  telle que la tangente à l'origine de cette fonction  $\bar{C}(\alpha)$  coupe l'axe des abscisses. On obtient ainsi

$$\frac{\delta_{cl}}{\delta} = \sqrt{\pi} \text{Re}^{-\frac{1}{2}} Sc^{-\frac{1}{2}} Pe - \frac{\sqrt{2}}{\Gamma} Pe. \quad (4.21)$$

Cette expression (4.21), est analogue à la relation (4.1) proposée par Cantor et Vogel [7]. La différence d'exposant pour le nombre de Schmidt provient du fait que Cantor et Vogel considèrent une couche limite autour d'une dendrite unique, alors que le modèle présenté est appliqué à une zone pâteuse, où la présence d'un liquide interdendritique est modélisée par le terme de Karma et Pelcé [8]. Le second terme de la relation (4.21), qui tend vers zéro lorsque  $\Gamma$  devient très grand (pour des valeurs typiques de nos expériences  $U \approx 10^{-3}$  m/s,  $V \approx 10^{-5}$  m/s, on

obtient  $\Gamma=10^2$ ) peut être interprété comme une pénalité de l'approximation faite en remplaçant  $e^{-\left(\frac{Vz}{D}\right)}$  par son développement limité.

Les calculs précédents sont limités au cas où  $U>0$  : le liquide entre dans la zone pâteuse au centre et en ressort radialement.

Nous allons maintenant nous intéresser au cas où  $U<0$  : le liquide sort de la zone pâteuse au voisinage de l'axe. Dans ce cas, en général, le terme  $e^{\left(\frac{Uz^2}{2RD}\right)}$  de l'équation (4.8) est fortement croissant et l'intégrale devient divergente. Cela traduit le fait que le soluté, est emporté à grande distance et que la couche solutale n'existe plus. Mais, il doit exister un régime intermédiaire où l'épaisseur de la couche solutale croît sans compromettre son existence. Dans ce régime,  $\frac{Uz^2}{2RD}$  doit demeurer assez petit pour que l'intégrale (4.9) converge

encore. Pour l'étudier, nous remplaçons  $e^{\left(\frac{-Uz^2}{2RD}\right)}$  par son développement limité au premier ordre  $1 + \frac{U^* z^2}{2RD}$  avec  $U^* = -U$  :

$\int_0^z e^{\left(-\frac{V}{D}z - \frac{U^*}{2RD}z^2\right)} dz = \int_0^z \left(1 + \frac{U^* z^2}{2RD}\right) e^{-\frac{V}{D}z} dz$ , qu'il est commode de décomposer de la façon suivante :

$$\int_0^z \left(1 + \frac{U^* z^2}{2RD}\right) e^{-\frac{V}{D}z} dz = \int_0^z e^{-\frac{V}{D}z} dz + \frac{U^*}{2RD} \int_0^z z^2 e^{-\frac{V}{D}z} dz. \quad (4.22)$$

Le premier terme s'intègre directement :

$$I_1'(z) = \int_0^z e^{-\frac{V}{D}z} dz = \frac{D}{V} \left(1 - e^{-\frac{V}{D}z}\right). \quad (4.23)$$

Le second terme fait appel à une double intégration par parties ce qui donne

$$I_2'(z) = \frac{U^*}{2RD} \int_0^z z^2 e^{-\frac{V}{D}z} dz = \frac{U^* D^2}{RV^3} \left[1 - e^{-\left(\frac{Vz}{D}\right)} \left(1 + \frac{Vz}{D} + \frac{V^2 z^2}{2D^2}\right)\right]. \quad (4.24)$$

L'expression de  $I'(z)$  est alors

$$I'(z) = \frac{D}{V} \left[1 + \frac{U^* D}{RV^2} - e^{-\frac{V}{D}z} \left(1 + \frac{U^* D}{RV^2} \left[1 + \frac{Vz}{D} + \frac{V^2 z^2}{2D^2}\right]\right)\right] \quad (4.25)$$

La distribution de la concentration  $C(z)$  est déduite en reportant cette expression dans la solution générale (4.7) :

$$C(z) - C_\phi = \left[ \frac{D}{V} \frac{G_l}{m} f^* - (1 - f^*)(1 - k)C_\phi \right] \left[ 1 + \frac{U^* D}{RV^2} - e^{-\frac{V}{D}z} \left( 1 + \frac{U^* D}{RV^2} \left[ 1 + \frac{Vz}{D} + \frac{V^2 z^2}{2D^2} \right] \right) \right]. \quad (4.26)$$

A l'aide des nombres définis précédemment (4.14), (4.15) et (4.16) modifiés par  $U^*$  au lieu de  $U$  et de la fonction normalisée définie par la relation (4.18), on obtient maintenant pour ( $U < 0$ ) :

$$\bar{C} = e^{-\eta} \frac{1 + \frac{\Gamma^2}{\text{Re Sc}} \left( 1 + \eta + \frac{\eta^2}{2} \right)}{1 + \frac{\Gamma^2}{\text{Re Sc}}}. \quad (4.27)$$

avec  $\eta = \frac{z}{\delta} \eta$ . Par la même technique que précédemment on en déduit la nouvelle épaisseur de la couche solutale soit :

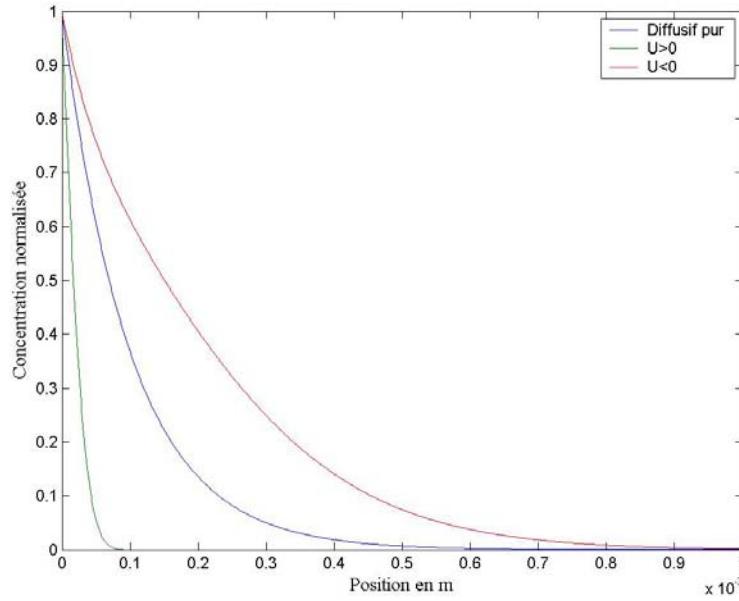
$$\frac{\delta_{c2}}{\delta} = 1 + \frac{\Gamma^2}{\text{Re Sc}} \quad (4.28)$$

Cette relation permet de rendre compte de l'effet du mouvement convectif dans cette configuration. Si  $U=0$ , on retrouve bien la couche solutale  $\delta$  définie dans le cas diffusif pur.

Nous avons représenté les distributions de la composition en avant du front de solidification en fonction du sens de l'écoulement sur la figure 4.5. Dans le cas diffusif ( $U=0$ ), il existe une couche solutale  $\delta$  purement diffusive à l'intérieur de laquelle la variation de la composition est donnée par l'expression classique en solidification  $e^{-\left(\frac{Vz}{D}\right)}$ . Lorsque l'écoulement forcé est entrant dans la zone pâteuse ( $U > 0$ ), la couche solutale  $\delta_{c1}$  s'amincit et l'on retrouve une relation très proche de celle obtenue par Cantor et Vogel [7]. Par contre, lorsque l'écoulement est sortant ( $U < 0$ ), la couche solutale  $\delta_{c2}$  s'épaissit.

Ces résultats sont qualitativement en accord avec les expériences, et ils permettent d'expliquer la présence du régime mixte.





**Figure 4.5 :** Représentation de la couche solutale dans le cas diffusif pur puis dans le cas convectif avec un fluide entrant dans la zone pâteuse.

*b) Présence d'une couche limite visqueuse le long du macro-front*

Dans cette option, le mouvement ne pénètre pas dans la zone pâteuse, on revient alors au champ de vitesse défini par la relation (4.4) en tenant compte de la couche limite visqueuse. A l'aide du nombre de Reynolds défini précédemment (4.14), modifié par  $|U|$  au lieu de  $U$ , le champ de vitesse s'écrit

$$\begin{aligned} u_r &= \frac{U}{2\sqrt{2}} \text{Re}^{\frac{1}{2}} \frac{r}{R} \frac{z}{R} \\ u_z &= -\frac{U}{2\sqrt{2}} \text{Re}^{\frac{1}{2}} \frac{z^2}{R^2} - V. \end{aligned} \quad (4.29)$$

Lorsque l'on reporte ce champ de vitesse dans l'équation de la concentration, on obtient

$$\frac{\partial^2 C}{\partial z^2} = \left( -\frac{V}{D} - \frac{U}{2\sqrt{2}} \text{Re}^{\frac{1}{2}} \frac{z^2}{DR^2} \right) \frac{\partial C}{\partial z}. \quad (4.30),$$

qui après une première intégration donne

$$C'(z) = \left[ \frac{D}{V} \frac{G_l}{m} f^* - (1 - f^*)(1 - k) C_\phi \right] e^{-\left( \frac{V}{D} z + \frac{U}{2\sqrt{2}} \text{Re}^{\frac{1}{2}} \frac{z^3}{3DR^2} \right)} \quad (4.31).$$

A l'aide des nombres définis précédemment (4.14), (4.15) (4.16) et (4.17) la relation (4.31) s'écrit

$$C'(z) = \left[ \frac{D}{V} \frac{G_l}{m} f^* - (1 - f^*)(1 - k) C_\phi \right] e^{-(\eta + a\eta^3)} \quad (4.32)$$

avec

$$a = \frac{\Gamma}{6\sqrt{2}} \frac{\text{Re}^{\frac{1}{2}}}{\text{Pe}^2}. \quad (4.33)$$

Une estimation en ordre de grandeur du paramètre  $a$  a montré que  $a \approx 10^{-2} \ll 1$ , pour les valeurs typiques de nos expériences ( $U \approx 10^{-3}$  m/s,  $V \approx 10^{-5}$  m/s, on obtient  $\text{Re}^{0.5} \approx 10$ ).

Pour cette gamme de valeurs de  $a \ll 1$ , une solution analytique peut être obtenue en écrivant son développement limité au premier ordre

$$e^{-\eta - a\eta^3} = e^{-\eta} (1 - a\eta^3). \quad (4.34)$$

La relation (4.32) peut alors s'intégrer en décomposant l'intégrale, ce qui nous permet d'aboutir à la fonction normalisée

$$\bar{C} = \frac{e^{-\eta}(1-6a) - 6a\eta e^{-\eta}(1 + \frac{\eta}{2} + \frac{\eta^2}{6})}{1-6a}. \quad (4.35)$$

Pour évaluer l'épaisseur de la couche solutale  $\delta_{c3}$ , on ne peut plus partir de (4.32) donnant la pente à l'origine. En effet, au voisinage de  $\eta=0$ ,  $a\eta^3 \ll \eta$ . Ceci signifie que toutes les courbes  $C(x)$  ont la même pente  $\frac{dC}{d\eta}$  en  $\eta=0$ , qui est  $-1$ , ce qui est en désaccord avec les valeurs de  $a$ .

Une autre façon d'évaluer  $\delta_{c3}$  consiste à remplacer  $e^{-\eta}$  par  $(1-\eta)$ , de calculer ainsi l'abscisse  $\eta^*$  où  $\bar{C} = \frac{1}{2}$  et de prendre le double  $\frac{\delta_{c3}}{\delta} = 2\eta^*$ . On obtient l'expression :

$$\frac{\delta_{c3}}{\delta} = 1 - 6a = 1 - \frac{\Gamma}{\sqrt{2}} \frac{\text{Re}^{\frac{1}{2}}}{\text{Pe}^2} \quad (4.36)$$

pour l'épaisseur de la couche solutale.

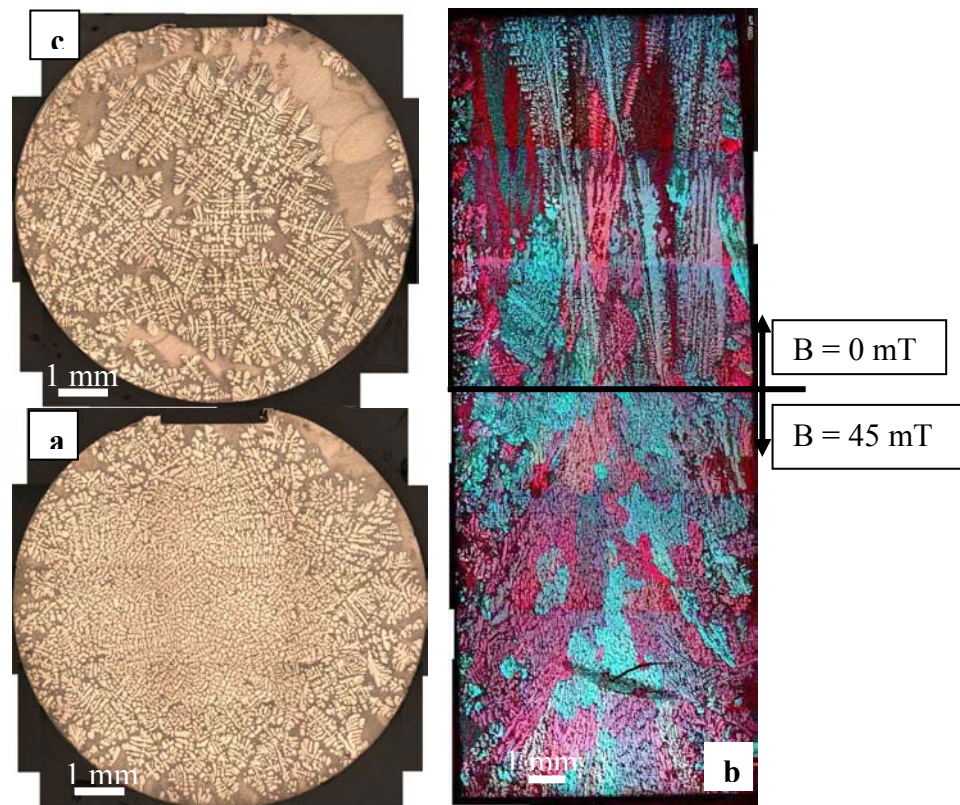
On s'aperçoit en effectuant  $U=0$  que l'on retrouve la couche diffusive  $\delta$  alors que dans le cas de la relation (4.21) on ne retrouvait pas le cas diffusif à cause de notre hypothèse de départ  $\frac{Vz}{D} \ll 1$ .

## 2.4 Effet de la convection sur les particules affinites

On peut également s'interroger sur l'effet de la convection forcée sur l'activité des particules affinites. En effet, malgré la présence de celles-ci, on observe une structure colonnaire lorsque la convection forcée dépasse un certain seuil. Afin de répondre à cette question nous avons réalisé une expérience pour mettre en évidence l'effet de la convection

sur l'activité de ces particules et donc sur la nucléation. L'expérience consiste à solidifier quelques centimètres sous une convection forcée suffisante pour provoquer la croissance de cette structure colonnaire à une vitesse où la croissance est équiaxe sans l'application du champ, puis de stopper la convection afin d'observer un retour vers une structure équiaxe. Si tel est bien le cas, on pourra admettre que la convection forcée joue un rôle crucial sur la nucléation hétérogène mais n'altère pas les particules affinant. Dans le cas contraire, c'est-à-dire si l'on observe autre chose qu'une structure équiaxe après arrêt du brassage forcé, nous pourrions conclure que la convection forcée détériore les particules affinant.

Les résultats de cette expérience (figure 4.6) montrent le passage d'une structure à grains allongés vers une structure colonnaire classique. Ce résultat suggère donc que la convection détériore les particules affinant pour la germination, ou bien que les particules ne sont plus présentes dans la partie haute de l'échantillon (sans champ). Avec le brassage, les particules affinant sont transportées par l'écoulement jusque des zones très chaudes, ce qui peut détruire la couche de  $\text{Al}_3\text{Ti}$  décisive pour la germination [1].



**Figure 4.6 :** Effet de la convection sur les particules inoculantes  $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$  ;  $G = 18 \text{ K.cm}^{-1}$  ;  $B = 30 \text{ mT}$  puis  $B = 0 \text{ mT}$  a) Coupe après 2 cm de solidification ( $B = 30 \text{ mT}$ ) b) Coupe longitudinale après 3 cm de solidification ( $B = 30 \text{ mT}$  /  $B = 0 \text{ mT}$ ) c) Coupe transverse après 7 cm de solidification ( $B = 0 \text{ mT}$ ).

De plus, Greer *et al.* [1] ont aussi montré que la taille des particules affinant était un paramètre non négligeable lors de la nucléation hétérogène. D'après cette étude, plus les particules ont une grande taille plus elles sont efficaces. Un autre phénomène pourrait être à l'origine de cette perte d'efficacité des particules. En effet, lors du brassage les particules sont transportées à travers le bain liquide mais aussi à travers la zone pâteuse. Il est alors assez facile d'imaginer que les particules de taille supérieure à un certain seuil lié à l'espacement secondaire interdendritique soient bloquées dans les bras secondaires des dendrites, alors que les plus petites (moins efficace d'après Greer) seraient transportées dans le bain liquide. On pourrait parler alors d'un « effet filtre » de la zone pâteuse pour les particules affinant qui s'ajouterait au phénomène de refusion de la couche  $\text{Al}_3\text{Ti}$  des plus petites particules.

### **3 Effet de la convection forcée sur la structure de grains d'un alliage non affiné : transition colonnaire-équiaxe**

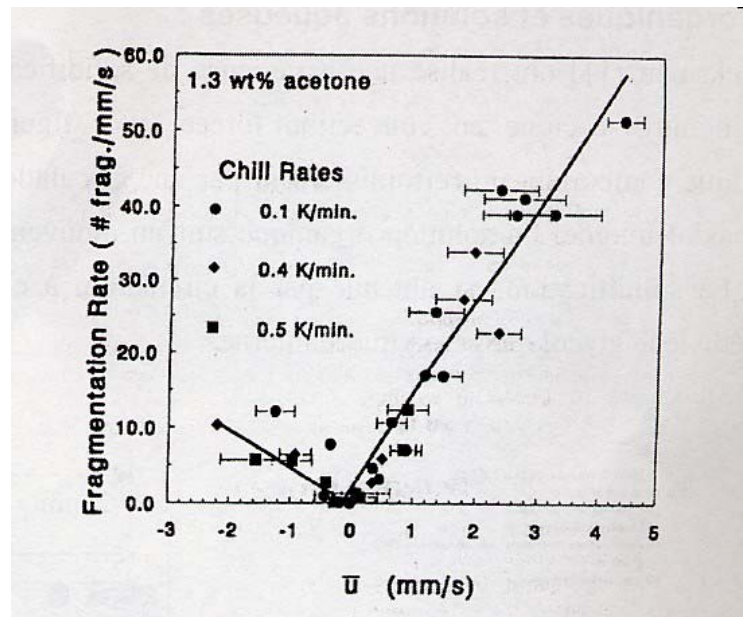
La transition colonnaire-équiaxe ne peut se produire que lorsque le nombre de grains équiaxes est suffisamment élevé pour stopper l'avancée du front colonnaire. Nous avons étudié, dans le paragraphe précédent, le cas des grains équiaxes qui germent sur des particules affinant. Dans le cas des alliages non affinés, hormis les impuretés, il n'y a pas d'éléments étrangers pour favoriser la germination des grains équiaxes. Cependant, des expériences en coulée continue, ont montré qu'il pouvait exister des grains équiaxes au centre des lingots alors que la structure originale était colonnaire.

En l'absence de particules inoculantes, le transport des bras de dendrites refondus dans le liquide a été identifié comme l'un des mécanismes de formation de structures dendritiques équiaxes par Jackson *et al.* [11]. L'écoulement naturel ou forcé peut favoriser le phénomène de fragmentation.

Dans cette étude, nous allons donc tenter de préciser l'influence de la convection forcée sur la solidification d'un alliage non affiné en espérant favoriser la nucléation des grains équiaxes à partir de fragments originaires des dendrites colonnaires. Nous allons détailler une série d'expériences réalisées sur un alliage non affiné en présence d'un champ magnétique glissant produisant un écoulement qui va dans le même sens que la convection naturelle. Afin d'étudier uniquement l'effet de la convection sur la transition colonnaire-équiaxe, nous avons choisi les paramètres de solidification de référence déjà détaillés au chapitre III. L'alliage  $\text{Al-Ni}_{3,5\%}\text{pds}$  non affiné solidifié avec une vitesse de solidification de  $10\mu\text{m.s}^{-1}$ , sans champ présente une structure colonnaire.

### 3.1 Influence de la convection forcée

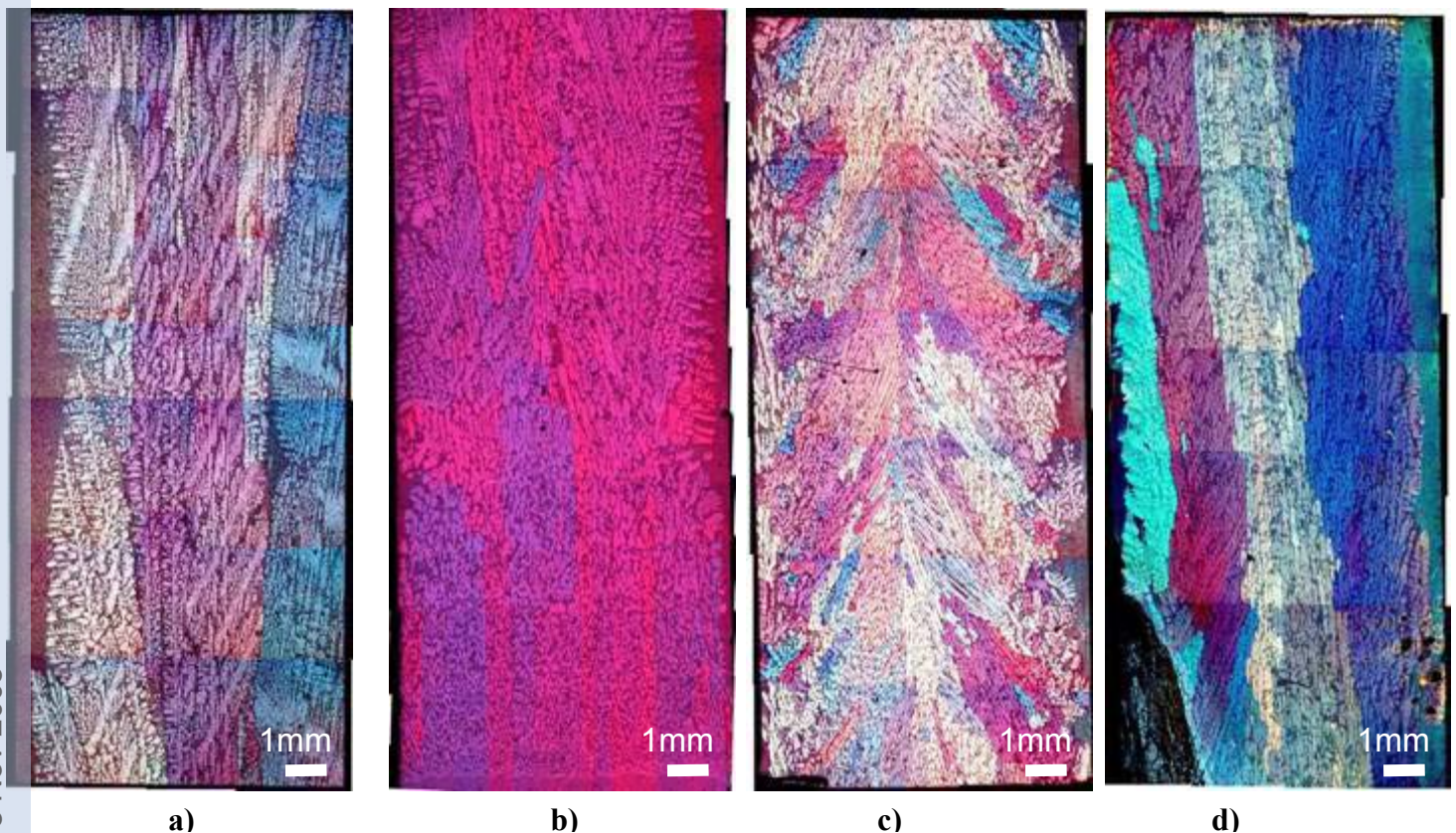
Plusieurs modèles [12, 13] ont montré que le nombre de fragments issus de la refusion des bras dendritiques augmentait avec le niveau de convection. Paradies *et al.* [12] ont réalisé des expériences de solidification sur un alliage organique en convection forcée et montrent que le nombre de fragments augmente avec la vitesse du fluide (figure 4.7). Moukassi *et al.* [13] ont aussi étudié la solidification (coulée continue) d'un alliage métallique en présence d'un brassage mécanique. Ils montrent qu'une augmentation de la vitesse de brassage conduit à une augmentation de la densité de fragments détachés dans le cas d'un alliage plomb-antimoine (Pb - Sb).



=**Figure 4.7** : Influence de la vitesse du fluide en avant de la zone pâteuse sur le taux de fragmentation lors de la solidification d'un alliage SCN-1,3wt% acétone d'après [12].

Dans le cadre de notre étude, nous observons que la convection forcée donne naissance à deux régimes différents lors de la solidification dirigée de l'alliage Al-Ni 3,5%pds non affiné (figure 4.8).





**Figure 4.8** : Solidification dirigée d'un alliage non affiné en présence d'une convection forcée qui amplifie la convection naturelle : a)  $B = 0 \text{ mT}$  ;  $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$  ;  $G_L = 26 \text{ K.cm}^{-1}$  b)  $B = 5 \text{ mT}$  ;  $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$  ;  $G_L = 24 \text{ K.cm}^{-1}$  .c)  $B=30\text{mT}$  ;  $V=10\mu\text{m.s}^{-1}$  ;  $G_L = 22 \text{ K.cm}^{-1}$  d)  $B = 70 \text{ mT}$  ;  $V = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$  ;  $G_L = 18 \text{ K.cm}^{-1}$ .

Lorsque l'on introduit un brassage dans le bain liquide à l'aide un champ magnétique glissant inférieur à 30 mT (figure 4.8 a et b), la structure colonnaire est très peu modifiée, et l'on observe toujours de gros grains colonnaires. La convection forcée ne semble pas suffisante pour perturber la structure de grains. Le phénomène de fragmentation n'a pas lieu.

Lorsque la convection forcée est « modérée » entre 30 et 45mT, une structure constituée de petits grains allongés évoluant des bords vers le centre apparaît (figure 4.8c). La zone pâteuse est alors déformée et les grains croissent dans la direction perpendiculaire à l'interface comme c'est le cas pour les alliages affinis (figure 4.1). Cependant, au-dessus de ce seuil (figure 4.8d), on observe un retour vers une structure colonnaire classique lorsque le brassage augmente alors que dans le cas des alliages affinis, la structure de grains n'évoluait plus lorsque le champ magnétique atteignait 30mT. Dans le cas de l'alliage affiné, la structure équiaxe allongée est la conséquence de la présence des particules affinant à l'intérieur du bain liquide. Dans le cas de l'alliage non affiné, la présence de cette structure allongée pourrait être expliquée de deux manières. Elle pourrait être due à un ensemencement du bain liquide par des phénomènes tels que la fragmentation des bras secondaires comme cela a déjà été observé par Paradies *et al.* ou par Moukassi *et al.*, ou, ces grains allongés pourraient être le



résultat d'une nucléation sur les parois comme dans le cas de la coulée continue. Cependant, il semble que l'on peut éliminer le phénomène de nucléation sur les parois du creuset, car si l'on observe la figure 4.8c, on constate la présence d'un liseré eutectique entre les grains et les parois, qui résulte d'une macroségrégation induite par le brassage électromagnétique. Si le champ magnétique est suffisant, le brassage est donc capable de créer des fragments [12, 13] mais la survie et la croissance de ces fragments sont liées à la présence d'une zone de surfusion en avant du front de solidification. Or si la convection forcée est intense, nous avons vu qu'elle pouvait balayer la couche solutale et, par conséquent, la zone de survie des fragments. Dans la gamme de valeurs du champ magnétique entre 30 et 45 mT, la convection semble capable, d'une part de faire apparaître des germes par fragmentation, et d'autre part de ne pas faire disparaître la zone de surfusion de constitution située en avant du front de solidification, nécessaire à la croissance de ces nouveaux germes. Cette supposition est justifiée par le fait que, lorsque l'on augmente encore l'intensité du champ magnétique en atteignant des valeurs proches de 70 mT, on observe un retour à une croissance colonnaire classique. De plus, en présence de forts champ, les fragments sont instantanément transportés vers des zones chaudes, où ils sont fondus par la circulation du fluide à l'échelle de l'échantillon. La présence du liseré eutectique nous laisse imaginer qu'une partie de la zone de surfusion de constitution située en avant des pointes des dendrites peut être préservée, mais uniquement dans la couche limite hydrodynamique (sur les parois du creuset), là où le liquide est ascendant. La taille de cette zone diminue lorsque l'intensité du brassage augmente comme nous l'avons vu avec le modèle analytique décrit au paragraphe 2.4.1.a pour  $U < 0$ .

La transition colonnaire-équiaxe n'a pas pu être observée à proprement parler car les grains obtenus (figure 4.8c) ne croissent pas de façon isotrope. Cependant, nous avons montré qu'il existe un domaine des paramètres du champ magnétique pour lequel il y a fragmentation des dendrites colonnaires et création de grains équiaxes allongés par rapport aux grains colonnaires issus du talon solide et pour lequel la croissance de ces grains est possible et devient le régime dominant. Cette observation est une première étape dans l'étude et le contrôle de la transition colonnaire équiaxe par un champ magnétique glissant.

#### 4 Conclusion

Des modèles analytiques [4] et numériques [5, 14] décrits au chapitre I, qui négligent la convection, permettent d'expliquer en partie comment la transition colonnaire-équiaxe s'opère mais de nombreux phénomènes restent encore à étudier. L'effet de la convection

forcée accentue les difficultés en introduisant de nouveaux germes dont l'origine n'est pas encore bien déterminée.

Il nous semble que cette transition est un scénario complexe dont seules quelques étapes sont pour l'instant accessibles. Pour aller au-delà des modèles, nous avons dans un premier temps étudié l'influence de la convection forcée sur la croissance équiaxe à l'aide d'alliages affinis, puis, à l'aide d'alliages non affinis nous avons étudié l'influence de la convection forcée sur la structure de grains.

Nous avons montré à l'aide d'un modèle analytique que le sens de l'écoulement est primordial lors de la croissance des grains équiaxes. En effet lorsqu'il entre dans la zone pâteuse au voisinage de l'axe, la couche solutale en avant du front de solidification s'amincit. Cet amincissement diminue la taille des zones de nucléation, de survie (c'est-à-dire sans refusion) et de croissance pour les grains équiaxes. A l'inverse, lorsque l'écoulement sort de la zone pâteuse au voisinage de l'axe, la couche solutale s'épaissit, les grains équiaxes peuvent germer et survivre même en présence de la convection.

Dans le cas des alliages non affinis, la transition colonnaire-équiaxe peut s'expliquer uniquement par un ensemencement du bain liquide par des fragments de dendrites qui composent la zone pâteuse. Ce phénomène de fragmentation a été étudié sur des alliages organiques par Jackson *et al.* [11] et par Paradies *et al.* [12] mais aussi par Moukassi *et al.* [13], sur des alliages métalliques. Dans le cadre de notre étude, la fragmentation peut expliquer le passage d'une structure colonnaire vers une structure équiaxe allongée. Mais, lorsque l'intensité du brassage augmente, il n'y a pas plus de grains équiaxes allongés. Dans ce cas, les fragments doivent être transportés vers des zones plus chaudes où ils sont fondus. Nous avons observé que la transition colonnaire-équiaxe peut apparaître uniquement pour une gamme de brassage qui obéit à deux conditions. La première est que l'intensité du brassage soit suffisante pour favoriser la création de fragments, et la seconde est qu'elle permette la survie et la croissance de ces fragments, elle-même liée à la présence d'une zone de surfusion en avant du front de solidification.

## Références du chapitre IV

1. A. L. Greer, A.M. Bunn, A. Tronche, P.V. Evans and D.J. Bristow, *Modelling of inoculation of metallic melts: application to grain refinement of aluminium by Al-Ti-B*, Acta Mater. 48, (2000) 2823
2. B.J. Mc Kay, P. Cizek, P. Schumacher, K.A.Q. and O'Reilly, *Heterogeneous nucleation in an Al-Ni-Si alloy studied using a metallic glass technique*", Materials Science and Engineering **A304-306** (2001), 240
3. P. Schumacher, and B.J. Mc Kay, *TEM investigation of heterogeneous nucleation mechanisms in Al-Si alloys*, Journal of Non-crystalline Solids **370** (2003) 123
4. J. D. Hunt, *Steady state columnar and equiaxed growth of dendrites and eutectic*, Materials Science and Engineering, **65** (1984) 75-83
5. M. A Martorano, C. Beckermann and C.A Gandin, *A solutal interaction mechanism for the Columnar to Equiaxed Transition in alloy solidification*, Metall. Mater. Trans. A, **34A** (2003) 1657
6. N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, T. Schenk, V. Cristiglio, M.D. Dupouy, J. Gastaldi, B. Billia, J. Härtwig, J. Baruchel, *In Situ Analysis of the Equiaxed Growth of Aluminium-Nickel Alloys by X-Ray Radiography at ESRF*, Journal of physics D: Applied Physics (Special issue XTOP2004), **38**, (2005), A28-A32
7. B. Cantor and A. Vogel, *Dendritic solidification and fluid flow*, J. of Crystal Growth **41** (1977) 109
8. A. Karma et P. Pelcé, *Oscillatory instability of deep cells in directional solidification*, Phys. Rev. A **39-8** (1989) 4162
9. W. Kurz and D. J. Fisher, *Fundamentals of Solidification*, Trans. Tech. Pub. (1990)
10. M.D. Dupouy and D. Camel, *Comparative study of the columnar-Equiaxed Transition in microgravity and on ground during directional solidification of a refined Al-3.5 wt% Ni alloy*, Proceedings of J. Phys. IV France 11 (2001)
11. K.A Jackson, J.D Hunt D.R Uhlmann and T. Seward III, Trans. Metall. Soc. AIME **233** (1966) 149
12. C.J. Paradies, R.N. Smith and M.E. Glicksmann, Metall., *The influence of convection during solidification and fragmentation of the mushy zone of a model alloy*, Met. Mater.Trans.A, **28A**, (1997), 875

13. M. Moukassi, *Influence du brassage du métal liquide sur le déroulement de la solidification des alliages métalliques. Application à la formation de la zone équiaxe dans la coulée continue*. Thèse de doctorat de l'INPL, (1988).
14. C.Y Wang and C. Beckermann, *Prediction of Columnar to Equiaxed Transition during Diffusion-Controlled Dendritic Alloy Solidification*, Metall. Mater. Trans. A, **25A** (1994) 1081
15. Y. Dabo, *Dynamique de formation de réseaux cellulaires en solidification dirigée d'alliages binaires*, Thèse Université Paul Cézanne Marseille 2001

## Conclusion et Perspectives

L'objectif principal de notre travail de recherche a concerné l'étude de l'influence d'un champ magnétique glissant sur la solidification dirigée d'un alliage métallique binaire. Dans ce but, nous avons conçu et réalisé le dispositif BATMAF (*Bridgman Apparatus with a Travelling Magnetic Field*) associant un four de type Bridgman et un brasseur électromagnétique permettant de produire le champ magnétique glissant. Cette étude vient s'ajouter aux travaux déjà effectués par Dupouy *et al.* au CEA-Grenoble sur l'influence de la convection sur la croissance dendritique.

Dupouy *et al.* avaient montré que la convection naturelle induite par la différence entre les conductibilités thermiques du solide et du liquide était non négligeable dans le cas des alliages d'aluminium. L'apparition d'une macroségrégation radiale présente sous la forme d'un liseré eutectique était alors inévitable lors de la solidification dirigée de cet alliage sous gravité normal.

Dans ce manuscrit, nous pensons avoir montré qu'il est possible de substituer à cette convection naturelle un mouvement organisé et d'intensité contrôlable à l'aide d'un brasseur électromagnétique à champ glissant. Le choix de ce moyen, par comparaison avec d'autres comme les brasseurs à champ tournant, est justifié par la simplicité de l'écoulement, purement poloïdal et par la possibilité du contrôle du sens et de l'intensité.

Notre attention s'est portée sur deux effets majeurs influencés par la présence d'un mouvement au sein de la phase liquide : la macroségrégation et la structure de grains (colonnaire et équiaxe).

L'effet des forces électromagnétiques sur la macroségrégation dépend de l'intensité et du sens de l'écoulement du fluide. Lorsque le mouvement ainsi engendré va dans le même sens que la convection naturelle (descendant au centre et ascendant à la périphérie), la taille du liseré eutectique diminue lorsque le niveau de brassage augmente. Le réseau dendritique devient alors de plus en plus compact au centre et le soluté est refoulé vers la périphérie de la zone pâteuse où il est accéléré à travers les couches visqueuses. Ce balayage engendre la présence d'une macroségrégation longitudinale qui n'était pas présente lors de la solidification en convection naturelle. En effet, le mouvement engendré par la convection naturelle reste local (à l'échelle de la zone pâteuse) alors que celui engendré par la convection forcée s'établit à l'échelle de tout l'échantillon. Lorsque l'écoulement s'oppose à la convection naturelle, après une compétition entre les deux phénomènes, il s'établit un régime

forcé qui accumule le soluté au centre de l'échantillon et donne naissance à un canal ségrégué central. Celui-ci contient une grande partie du soluté ce qui entraîne un réseau dendritique de plus en plus compact à la périphérie.

Nous avons constaté au chapitre IV que cette convection forcée a des effets non négligeables sur la croissance équiaxe. Lorsque le niveau de brassage est suffisant, la zone pâteuse est déformée et permet une croissance colonnaire malgré la présence de particules inoculantes introduites pour favoriser la croissance équiaxe. La convection forcée entraîne une diminution de la taille de la couche solutale en avant du front dendritique détruisant ainsi la zone de germination des grains équiaxes lorsque l'écoulement est entrant. De plus, les particules ou les germes sont transportées vers des zones très chaudes où ils sont partiellement refondus. Lorsque la convection atteint une valeur suffisante, la croissance dendritique évolue vers une structure allongée dans la direction oblique du gradient de température (de la périphérie vers le centre de l'échantillon). Pour mieux comprendre ces phénomènes, nous avons développé un modèle analytique qui permet d'étudier l'évolution de la couche solutale en fonction de l'écoulement.

Dans le cas des alliages non affinés, la convection forcée favorise l'évolution d'une structure colonnaire verticale vers une structure de grains allongés. Cette structure est la même que celle observée avec des alliages affinés où la nucléation en périphérie se développe à partir des particules inoculantes. Dans le cas des alliages non affinés, il est souvent admis que cette nucléation s'amorce sur des germes provenant de fragments originaires des dendrites colonnaires initiales. Par contre, lorsqu'on augmente le brassage, la structure évolue vers une structure colonnaire classique qui croît dans la direction de la vitesse de tirage. Cette observation montre que la convection forcée peut engendrer une fragmentation et une structure de grains de type grains allongés. Toutefois, ce phénomène ne peut plus se produire au dessus d'un certain seuil convectif, au-delà duquel la survie des fragments situés en avant du front de solidification n'est plus assurée. Ceci suggère que le régime convectif permettant une solidification équiaxe ne peut exister que dans une gamme de vitesse assez étroite, entre les conditions favorables à la fragmentation et celles qui suppriment les zones de survie nécessaires à la croissance des fragments.

Un prolongement naturel de cette thèse consisterait à poursuivre l'étude systématique des effets d'un écoulement forcé sur les macroségrégations et sur la transition colonnaire-équiaxe. Le cas présent, où l'étude de la macroségrégation a été effectuée sur un alliage thermiquement et solutalement stable (le soluté est plus lourd que le solvant), quel que soit son intérêt scientifique, ne suscite pas vraiment un intérêt industriel car la macroségrégation est limitée à



un liseré eutectique. Par contre, dans le cas des alliages de type Al-Li par exemple, la convection naturelle engendre des « *freckles* » qui sont des défauts à éliminer en fonderie. A l'aide d'un dispositif comme BATMAF, on pourrait s'attendre à ce que ces défauts soient expulsés en périphérie de l'échantillon d'où ils pourraient ensuite être retirés par usinage mécanique.

L'étude de la transition colonnaire-équiaxe doit être approfondie en affinant les paramètres expérimentaux lors de la solidification. Nous avons vu que l'utilisation du champ magnétique glissant favorise la création de fragments sous certaines conditions, (intensité du brassage) mais que les zones de survies étaient balayées ne permettant pas aux germes de se développer. Une prolongation à cette étude pourrait consister à utiliser le champ magnétique glissant par intermittence, c'est-à-dire en le faisant fonctionner uniquement pendant des périodes courtes toutefois assez longues pour extraire les fragments de la zone pâteuse. L'arrêt de la circulation fluide permettrait aux germes de survivre en restant dans une zone limitrophe de la zone pâteuse. Le temps de transit des germes à l'intérieur de la zone pâteuse devrait alors permettre de déterminer la durée de la période d'utilisation du champ magnétique glissant pour transporter ces fragments vers l'extérieur.

De plus, toute cette étude a été menée avec une vitesse de tirage fixe de  $10 \mu\text{m.s}^{-1}$ . Il serait judicieux de faire évoluer ce paramètre afin d'étudier la compétition qui existe entre la convection naturelle et la circulation forcée lorsqu'elles s'opposent. Cette comparaison pourrait mettre en avant la présence d'un régime quasi-diffusif comme celui observé par Lehmann *et al.* à l'aide d'un champ magnétique permanent.

Enfin, le choix d'un alliage contenant un intervalle de solidification plus grand engendrerait une zone pâteuse plus grande et, lorsque l'on introduirait une convection forcée, les zones de survies des fragments seraient plus grandes que celles observées avec notre alliage. L'alliage Al-Si 7%*pds* semble être un bon candidat pour de telles expériences, puisqu'il possède un intervalle de solidification de l'ordre de 40 °C. De plus, il a un réel intérêt industriel.

## **ANNEXE 1 : Propriétés thermo-physiques de l'alliage Al-Ni 3,5%pds**

Température de liquidus de Al-Ni 3,5%pds	648 °C
Température eutectique	640 °C
Coefficient de partage de Ni dans Al	$3,7.10^{-3}$
Chaleur latente de solidification	$4.10^5$ J/kg
Pente du liquidus locale	-3,6 K / %pds
Diffusion thermique du liquide	$6,5.10^{-5}$ cm <sup>2</sup> /s à 600 °C $3,6.10^{-5}$ cm <sup>2</sup> /s à 1000 °C
Viscosité cinématique du liquide	$1,3.10^{-3}$ cm <sup>2</sup> /s à 600 °C $4.10^{-3}$ cm <sup>2</sup> /s à 1000 °C
Coefficient de diffusion du nickel dans l'alliage fondu	$2,2.10^{-5}$ cm <sup>2</sup> /s à 1000 °C
Coefficient d'expansion thermique de Al	$1,2510^{-4}$ K <sup>-1</sup>
Coefficient d'expansion massique de Ni dans Al	$8,4.10^{-3}$ (%pds) <sup>-1</sup>
Conductivité thermique du liquide	1,07 J/cm.K.s à 700 °C
Conductivité thermique du solide	2,21 J/cm.K.s à 600 °C
Coefficient de capillarité $\Gamma$	$2,4.10^{-5}$ K.cm
Dilatation volumique du moule de 20°C à 800°C	20%
Masse volumique de Al liquide	2380 Kg/m <sup>3</sup> à 660 °C
Masse volumique de Al-3,5 %pds	2450 Kg/m <sup>3</sup> à 648 °C
Masse volumique eutectique liquide	2490 Kg/m <sup>3</sup> à 640 °C
Coefficient de retrait de l'alliage	0.07

### **Diagrammes de phases :[15]**

